

ÉTUDE DE L'EFFET DU BRASSAGE ÉLECTROMAGNÉTIQUE SUR LES MICROSTRUCTURES D'ALLIAGES CUIVREUX

THÈSE N° 2818 (2003)

PRÉSENTÉE À LA FACULTÉ SCIENCES ET TECHNIQUES DE L'INGÉNIEUR

Institut des matériaux

SECTION DES MATÉRIAUX

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

PAR

Thomas CAMPANELLA

DEA en science des matériaux, Université de Provence, Marseille, France
et de nationalité française

acceptée sur proposition du jury:

Prof. M. Rappaz, directeur de thèse
Dr C. Charbon, rapporteur
Prof. Y. Fautrelle, rapporteur
Prof. J. Thome, rapporteur

Lausanne, EPFL
2003

REMERCIEMENTS



Ce travail de recherche a été mené au Laboratoire de Métallurgie Physique de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (Institut des Matériaux), avec le soutien financier de la Commission pour la Technologie et l'Innovation (CTI) de l'Office Fédéral Suisse de la formation professionnelle et de la technologie, et avec la participation du partenaire industriel Swissmetal (CH).

Je tiens, bien évidemment, à remercier le professeur Michel Rappaz pour m'avoir donné la possibilité de travailler au sein du groupe simulation du laboratoire, au cours de ces quatre années. Sa grande connaissance de la solidification a toujours été une source inépuisable d'idées et de conseils avisés, qui m'ont permis d'avancer lorsqu'il était impossible de s'en sortir seul. C'est pourquoi, je lui exprime toute ma reconnaissance quant à la direction de ce travail de thèse.

Je remercie également le professeur Wilfried Kurz, directeur du laboratoire au cours de la majeure partie de mon doctorat, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire, auquel il a su insuffler une dynamique de travail d'une excellente qualité, sans omettre l'importance des relations humaines.

J'adresse également mes profonds remerciements :

Aux professeurs K. Scrivener, J. R. Thome et Y. Fautrelle ainsi qu'au docteur Ch. Charbon, pour avoir accepté de consacrer du temps à l'évaluation de ce travail;

Au docteur Christian Charbon ainsi qu'à Emmanuel Vincent, Stéphane Gillièron, Pierre-Yves Emery et Sylvia Biselli du partenaire industriel Swissmetal, pour leurs contributions dans ce projet;

A Pierre-Daniel Grasso, pour son amitié, son aide ainsi que pour sa patience. Il a réussi à me supporter pendant près de quatre longues années passées dans le même bureau, sans devenir complètement "fada". A nos discussions et à nos moments de franche rigolade qui ont toujours été source de complicité;

Aux docteurs Christel Péquet et Thomas Kämpfer, pour la camaraderie et l'amitié que nous avons partagé lors de leur séjour au laboratoire;

Aux joyeux lurons du CTML, et en particulier Jean-Daniel Wagnière le psychologue-caviste attitré du laboratoire, Sélim Mokadem et les docteurs Cyrille Bezençon et Stéphane Dobler (déjà parti en entreprise) pour les discussions et les moments de détente que nous avons passé ensemble;

Aux membres et anciens membres du groupe Diamants, et en particulier à Heiko Seehofer et à sa femme Isabelle;

A Jürgen Stramke pour son aide technique ainsi qu'à Brian Neal pour ses nombreuses contributions concernant la métallographie et surtout son humour "so british";

Au docteur Alain Sfera du Centre Interdépartemental de Microscopie Electronique, pour sa maîtrise de l'EBSD, avec laquelle il a pu obtenir des cartes d'orientations superbes à partir d'échantillons difficiles à analyser;

A toute l'équipe de l'atelier de l'institut des matériaux, Louis-Henry Masson, Werner Brönnimann, Tristant Bircher, Jean-Marc Coulomb, Yves Ruschetta et Eric Vassalli, sans qui ce travail expérimental n'aurait jamais abouti;

A Laurent Jordi, François Bühlman et Christian Müller, qui ont participé, par leurs projets de semestre et leur stage de fin d'année, à la mise en oeuvre de certains travaux expérimentaux;

A tous mes collègues et anciens collègues du LMPH, et en particulier à Jean-Luc Desbiolles et au docteur Alain Jacot pour les nombreuses discussions concernant les subtilités du logiciel *Calcosoft*, aux docteurs Jean-Marie Drezet, Alain Sémoroz, Tuomas Jalanti, Xavier Doré, Laurent D'Alvise et Gaël Couturier, ainsi qu'à Cédric Barraud, Jonathan Carron, Vincent Mathier et Frédéric Kohler, pour leur participation à ce travail, de manière scientifique ou simplement par l'atmosphère conviviale qu'ils ont créé au laboratoire. J'adresse également mes remerciements à Arlette pour le suivi administratif de ce projet et pour son infatigable bonne humeur.

Et bien sûr à tous ceux que j'oublie ...

Je voudrais également décerner une mention très spéciale à ma famille (Campanella, Naud et "dérivés") et aux amis qui m'ont soutenu au cours de cette période. Je rend hommage tout particulièrement à mes parents qui ont rendu cette aventure possible ainsi qu'à mon frère, pour la grande complicité que l'on partage (je confirme, la sub est beaucoup mieux que la type-R).

Enfin, je dédie ce travail à ma femme, Frédérique, qui a toujours su m'épauler dans les moments difficiles et partager les moments de joie. Je la remercie du fond du coeur pour son amour sans cesse grandissant.

VERSION ABRÉGÉE



Dans le but d'éliminer les défauts internes et surfaciques qui apparaissent dans les lingots lors de la coulée continue d'alliages métalliques, une microstructure fine et homogène est très souvent recherchée. C'est pourquoi, lorsque l'ajout de particules inoculantes est impossible, la technique de brassage électromagnétique (Electromagnetic Stirring, EMS) est employée au cours de la solidification. Cette technique consiste à créer des mouvements de convection dans le liquide par l'action d'un champ électromagnétique. Cette convection importante du liquide provoque une croissance équiaxe, au dépend de la croissance dendritique colonnaire (qui se forme sans EMS). Une structure homogène à grains fins est alors observée.

L'objectif de ce travail de recherche est d'étudier l'effet du brassage électromagnétique sur les structures de grains obtenues pour deux alliages industriels à base de cuivre : C97 (Cu-1%Ni-1%Pb-0.2%P) et BZ4 (Cu-4%Zn-4%Sn-4%Pb). En l'occurrence, il s'agit de déterminer les paramètres expérimentaux pour que l'affinage des grains soit optimal, de caractériser leurs effets sur la solidification et de comprendre les mécanismes physiques responsables de l'affinage. Pour cela, un procédé de solidification dirigée de type Bridgman, équipé d'un dispositif de brassage électromagnétique a été conçu au laboratoire. En effet, le procédé de coulée continue industriel étant trop rigide et trop complexe à étudier, les investigations ont été principalement menées sur cette installation de laboratoire, nous permettant de définir l'influence de chacun des paramètres expérimentaux : puissance d'induction, vitesse de tirage, position de l'inducteur, température du liquide et composition de l'alliage. Cette étude expérimentale a été complétée par la simulation numérique des conditions de coulée.

L'analyse des structures affinées ou non a montré que les facteurs dominants concernant la capacité du brassage à affiner la structure sont la position de l'inducteur par rapport au liquidus et la perméabilité de la zone pâteuse de l'alliage. Plus l'alliage est perméable au voisinage du liquidus, plus l'affinage est effectif. En ce qui concerne la position de l'inducteur, les mesures de température in-situ ont montré clairement le réchauffement local du liquide induit par les mouvements de convection. Pour affiner correctement l'alliage le moins allié (C97), ce réchauffement local doit être positionné sur le front de croissance des dendrites.

Dans le processus d'affinage des structures de grains par EMS, la fragmentation par refusion des bras de dendrites et la survie de ces fragments jouent un rôle essentiel. La refusion ne peut avoir lieu qu'à la condition que le liquide "chaud" puisse pénétrer la zone pâteuse. La notion de perméabilité selon le modèle de Karman-Cozeny a donc été utilisée en simulation pour modé-

liser la pénétration du liquide dans la zone pâteuse. A partir de ces résultats, un critère de refusion, basé sur le modèle de macroségrégation de Flemings, a été développé et appliqué à notre cas. Ce critère montre que la refusion a lieu dans le cas où la vitesse du liquide interdendritique est plus élevée que celle d'avance des isothermes. Lors de notre étude, la vitesse du liquide interdendritique a été calculée par simulation numérique pour les deux alliages, dans différentes conditions expérimentales. Ces résultats ont confirmé l'importance de rapprocher l'inducteur de la position du liquidus pour refondre les dendrites, notamment dans le cas de l'alliage C97, qui s'avère être beaucoup plus difficile à affiner que l'alliage BZ4.

Enfin, la survie des fragments a également été étudiée. Cette dernière dépend des conditions de coulée (vitesse de tirage et gradient thermique) et de la composition de l'alliage. De par les différences de composition des deux alliages, il a pu être montré que la survie des fragments est plus importante lors de la solidification de l'alliage BZ4, par rapport à l'alliage C97.

ABSTRACT



In order to eliminate internal and surface defects, which appear in the ingots during continuous casting of metallic alloys, homogeneous and fine structures are often required. Therefore, when the adjunction of inoculant substances is not possible, the electromagnetic stirring (EMS) process is used during solidification. It consists to create convective movements in the liquid part of the casting, by the action of an electromagnetic field. A fine equiaxed grain structure can then be observed.

The main goal of this research is to study the effect of the EMS process on grain structures for two industrial copper-base alloys : C97 (Cu-1%Ni-1%Pb-0.2%P) and BZ4 (Cu-4%Zn-4%Sn-4%Pb). In particular, it included the determination of the optimal experimental parameters to obtain a grain refinement, the characterization of their effect on the solidification and the understanding of the physical mechanisms driving grain refinement. For that purpose, a Bridgman type furnace was modified in order to add an electromagnetic stirring device. Indeed, as the industrial continuous casting process is rigid and complex, the investigations were easier to carry out on the Bridgman installation, enabling us to define the influence of each experimental parameter : power of the induction, casting speed, coil position, temperature of the liquid and composition of the alloy. This experimental study was completed by the numerical simulation of the experimental conditions.

The analysis of the structures, refined or not, showed that the dominant factors concerning the capacity of EMS to refine the structure, are the position of the inductor with respect to the liquidus, and the permeability of the mushy zone of the alloy. The more permeable the alloy is near the liquidus the more effective is the grain refinement. Concerning the position of the inductor, in-situ temperature measurements clearly revealed the local reheating of the liquid induced by convection. To correctly refine the low concentration alloy (C97), this local reheating must be brought on the position close to the dendrite position.

During EMS-induced grain refinement, fragmentation of the dendrite arms by remelting and their survival in the melt are prevalent. Remelting can occur only if the "hot" liquid penetrates the mushy zone. Thus, the concept of permeability according to the model of Karman-Cozeny was used in simulation in order to characterize the penetration of the liquid in the mushy zone. From these results, a criterion of remelting, based on Flemings model of macrosegregation, was adapted and applied to our case. This criterion shows that remelting takes place if the velocity of the interdendritic liquid is larger than the speed of the isotherms. The velocity of the interden-

dritic liquid was calculated by numerical simulation for both alloys, under various experimental conditions. These results confirmed the importance to bring the inductor closer to the position of the liquidus to remelt dendrites, in particular in the case of the C97 alloy, which proves to be much more difficult to refine than the BZ4 alloy.

Lastly, survival of the fragments was also studied. It depends on the casting conditions (casting speed and thermal gradient) and on the composition of the alloy. From the differences in composition of both alloys, it could be shown that the survival of dendrites fragments is improved during the solidification of the BZ4 alloy, compared with the C97 alloy.

TABLE DES MATIÈRES



CHAPITRE 1 : INTRODUCTION	1
1.1. LES ALLIAGES À BASE CUIVRE	1
1.1.1. Le cuivre	1
1.1.2. Aperçu de l'économie du cuivre	1
1.1.3. Les principaux alliages à base cuivre	1
1.2. LA COULÉE CONTINUE	3
1.2.1. Principe	3
1.2.2. Structures de coulée	3
1.3. L'AFFINAGE DE LA STRUCTURE	5
1.4. OBJECTIFS DU TRAVAIL DE RECHERCHE	6
CHAPITRE 2 : REVUE BIBLIOGRAPHIQUE	9
2.1. LES ALLIAGES CUIVREUX MULTICOMPOSÉS	9
2.1.1. Les alliages binaires Cu-Ni, Cu-Zn, Cu-Sn, Cu-Pb et Cu-P constituants des alliages industriels	9
2.1.2. Les alliages multicomposés Cu-Ni-Pb-P et Cu-Zn-Sn-Pb	10
2.2. STRUCTURES DE COULÉE	10
2.2.1. Notions d'interface solide-liquide et d'instabilités	10
2.2.2. Développement des microstructures dendritiques	13
2.2.3. Transition colonnaire-équiaxe	18
2.2.4. Microségrégation et fraction de solide	20
2.3. L'AFFINAGE DE GRAINS PAR EMS : LA MHD APPLIQUÉE AUX LIQUIDES MÉTALLIQUES	22
2.3.1. Electromagnétisme et convection : principes généraux	22
2.3.2. Procédés de brassage électromagnétique	25
2.3.3. Etudes sur l'effet du brassage électromagnétique en métallurgie	28
2.3.4. Le processus d'affinage de grains par fragmentation de bras de dendrites	31
CHAPITRE 3 : MODÉLISATION	37
3.1. ECHELLE MICROSTRUCTURALE	37
3.1.1. Cinétique de croissance	37
3.1.2. Espacement secondaire des bras de dendrite	38
3.1.3. Transition colonnaire-équiaxe selon le modèle de Hunt	38
3.1.4. Fraction de solide	39
3.1.5. Perméabilité de la zone pâteuse	40
3.2. ECHELLE DES PROCÉDÉS	41
3.2.1. Transformations de phase	41
3.2.2. Rayonnement	42
3.2.3. L'induction électromagnétique	44

3.2.4. Mouvements de convection	45
CHAPITRE 4 : MÉTHODES EXPÉRIMENTALES	47
4.1. ECHANTILLONS	47
4.2. ANALYSE THERMIQUE APPLIQUÉE AUX MÉTAUX	47
4.2.1. L'analyse thermique différentielle, ATD ou DTA	48
4.2.2. L'analyse thermique à double creuset imbriqué, ATDC ou SPTA	53
4.3. EXPÉRIENCES DE SOLIDIFICATION	56
4.3.1. Coulées industrielles	56
4.3.2. Solidification dirigée en laboratoire	58
4.4. MÉTALLOGRAPHIE	61
4.5. OBSERVATIONS ET MESURES PAR MICROSCOPIE ÉLECTRONIQUE À BALAYAGE	62
4.5.1. Observations topographiques et contraste chimique	62
4.5.2. Mesures par EDX (Energy Dispersive X-ray Spectrometer)	63
4.5.3. Mesures d'orientation par "Electron Back-Scattered Diffraction" (EBSD)	64
CHAPITRE 5 : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET NUMÉRIQUES	67
5.1. SOLIDIFICATION SOUS GRADIENT NUL	67
5.1.1. Calculs de l'évolution de la fraction de solide	67
5.1.2. Comparaison des résultats DTA et SPTA	73
5.2. SOLIDIFICATION DIRIGÉE SANS EMS	75
5.2.1. Observations	75
5.2.2. Microségrégation interdendritique	79
5.2.3. Mesures et prédiction de la taille de la microstructure	81
5.2.4. Orientation des grains	84
5.3. SOLIDIFICATION DIRIGÉE AVEC EMS	87
5.3.1. Affinage des grains	87
5.3.2. Orientation des grains	90
5.3.3. Effets des paramètres de coulée lors des essais de type Bridgman	93
5.3.4. Effets des paramètres de coulée industrielle	106
5.4. MODÉLISATION DE L'EFFET DU CHAMP MAGNÉTIQUE À L'ÉCHELLE DES PROCÉDÉS	108
5.4.1. Simulation du procédé de solidification Bridgman : logiciel utilisé et choix des conditions aux limites	108
5.4.2. Modélisation des expériences en laboratoire	109
CHAPITRE 6 : MÉCANISMES D'AFFINAGE DE STRUCTURES DE GRAINS PAR ACTION D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE	117
6.1. CROISSANCE DENDRITIQUE SOUS CONVECTION FORCÉE	117
6.1.1. Notion de perméabilité	117
6.1.2. Vitesse du liquide au voisinage du liquidus	119
6.2. CONDITIONS EXPÉRIMENTALES	122
6.2.1. Mesures de température	122
6.2.2. Optimisation des procédés	125
6.2.3. Vitesse et mode de tirage	129
6.3. MÉCANISMES ET PRÉDICTION DE L'AFFINAGE DE GRAINS	130
6.3.1. Transition colonnaire-équiaxe	130
6.3.2. Caractérisation de l'effet du champ magnétique	135
6.3.3. Refusion des bras de dendrite	138
6.3.4. Transport et survie des fragments	146
CHAPITRE 7 : CONCLUSION	151

LISTE DES SYMBOLES	155
ANNEXE A : DIAGRAMMES DE PHASES	159
ANNEXE B : PROPRIÉTÉS PHYSIQUES	163
RÉFÉRENCES	165

INTRODUCTION



1.1. LES ALLIAGES À BASE CUIVRE

1.1.1. Le cuivre

L'élément cuivre appartient à la classe I B du tableau périodique des éléments. C'est un métal de densité égale à 8960 kg/m^3 , de couleur rouge et qui fond à 1084.87°C . Malléable et ductile, il est le meilleur conducteur de la chaleur et de l'électricité après l'argent.

Le cuivre, découvert à l'état natif vers la fin de l'âge de pierre, a joué un rôle important dans l'histoire de l'humanité, servant d'outil, d'armes ou de bijoux. Les premiers bronzes (alliage de cuivre et d'étain) sont apparus vers 3500 ans avant J.C. Les applications du bronze ont été multiples, constituant des pièces d'artillerie ou d'instruments de précision. Les laitons (alliage de cuivre et de zinc) n'ont été utilisés que plus tard, principalement en construction marine pour leur bonne résistance à la corrosion. Cependant le débouché principal du cuivre et ses alliages reste, à ce jour, l'industrie électrique (câbles, contacts, etc...) et la construction (conduites d'eau).

1.1.2. Aperçu de l'économie du cuivre

La production mondiale de cuivre affiné a dépassé en 2001, les 15.5 millions de tonnes, contre environ 13.5 millions de tonnes en 1997 (The International Copper Study Group (ICSG)). Par comparaison, la production mondiale d'aluminium a été de 20.5 millions de tonnes, en 2001 (The International Aluminium Institute). Le continent américain est le plus grand producteur de cuivre affiné, avec plus de 41% de la production mondiale, l'Union Européenne ne produisant que 12%. Par ailleurs, la consommation la plus forte est enregistrée sur le continent asiatique avec 39% de la production mondiale. Remarquons que l'Union Européenne, à elle seule, consomme autant que le continent américain (principalement les Etats Unis), c'est-à-dire 25%.

1.1.3. Les principaux alliages à base cuivre

Les propriétés pour lesquelles les alliages de cuivre sont les plus utilisés, sont leur conductibilité électrique et leur résistance à la corrosion. A ces deux propriétés de base, il faut souvent

ajouter des propriétés de résistance mécanique ou d'aptitude à la mise en oeuvre, pour satisfaire les exigences technologiques de plus en plus pointues.

Les cuivres faiblement alliés

Ces alliages cuivreux contiennent des éléments d'alliages dont la teneur est inférieure à 2% poids. Le plus souvent, ces additions permettent d'améliorer les caractéristiques mécaniques, tout en conservant une excellente conductibilité électrique et thermique ainsi qu'une bonne résistance à la corrosion :

- l'argent améliore la tenue à chaud,
- le tellure est utilisé pour la fabrication par usinage,
- le chrome augmente la résistance aux déformations,
- le béryllium permet d'obtenir des caractéristiques mécaniques élevées.

La multitude des besoins industriels induit l'existence de nombreux autres alliages dans cette catégorie : le cuivre à l'étain, au zirconium, au fer, au soufre, au plomb, au manganèse, etc ...

Les laitons

Principalement composé de cuivre et de zinc (entre 5 et 45% poids), ces alliages contiennent d'autres éléments d'alliages dans le but d'augmenter certaines propriétés. L'élément le plus couramment ajouté est le plomb, facilitant l'usinage. Utilisés le plus souvent sous forme de produit semi-fini, les laitons sont les alliages du décolletage (usinage des pièces sur tour automatique) et peuvent se classer en 3 catégories : les laitons simples (alliages binaires cuivre-zinc), les laitons au plomb (contenant jusqu'à 40% poids de zinc et 1 à 3% de plomb) et les laitons spéciaux.

Les bronzes

Les bronzes ont une teneur en étain comprise entre 3 et 20% poids. Ces derniers sont le plus souvent utilisés comme alliage de fonderie, de par leur aptitude au moulage. Les principales débouchées des bronzes sont les industries mécaniques, électriques et électroniques.

Les cupro-aluminums, cupro-nickel et maillechorts:

Caractérisés par une bonne résistance à la corrosion, alliés à des caractéristiques mécaniques élevées, les cupro-aluminums contiennent de 4 à 15% d'aluminium. Dans certains cas, du fer, du nickel ou du manganèse, peuvent être ajoutés, à des teneurs maximales de l'ordre de 5%. La majeure partie de leur utilisation s'effectue pour des pièces utilisées en milieu marin de par leurs propriétés anti-corrosion et anti-fouling (protection des coques de navire contre la prolifération des algues sous-marines).

Les maillechorts sont des alliages de cuivre, nickel et de zinc et sont très utilisés en orfèvrerie et décoration.

1.2. LA COULÉE CONTINUE

1.2.1. Principe

La coulée continue consiste à solidifier, en continu, un alliage liquide par contact avec un moule froid, dont la température est contrôlée par un courant d'eau froide (refroidissement primaire), et par jets d'eau directement dirigés sur la surface du métal (refroidissement secondaire). Le liquide est alors alimenté en continu et la partie solide entraînée à une vitesse donnée (vitesse de tirage). Les procédés de coulée continue peuvent avoir une configuration horizontale ou verticale.

Dû à l'extraction de chaleur localisée à la surface du métal et à la vitesse de tirage généralement importante, l'interface entre la partie liquide et la partie solide du métal forme un "puits". On parle alors de puits liquide. Il est important de noter que, lors de la solidification d'alliages par coulée continue, la courbure des isothermes est associée à un gradient de température dirigé de la surface vers le centre de l'échantillon. Cette orientation du gradient thermique va influencer la direction de croissance de la structure du solide.

Une illustration d'une coulée continue industrielle verticale est représentée sur la figure 1.1.

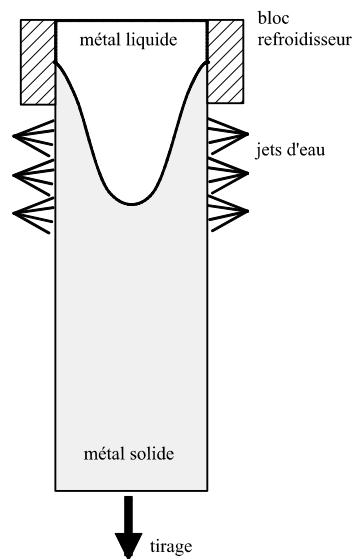


Figure 1.1 : Représentation schématique de la coulée continue verticale. La partie liquide est refroidie par le bloc refroidisseur constituant le moule dans lequel le métal est coulé, et par des jets d'eau en dessous.

1.2.2. Structures de coulée

La transition de l'état liquide à l'état solide, lors de la solidification d'alliages métalliques, est généralement hors équilibre. Si l'interface solide-liquide est elle-même proche de l'équilibre thermodynamique (équilibre défini par les diagrammes de phase), des gradients thermiques ou solutaux induisent une déstabilisation de l'interface. Cette dernière provoque la naissance de

formes diverses de l'interface qui conduisent à l'obtention d'une configuration de la partie solide, appelée microstructure. On définit trois différentes classes de morphologies d'interface pour la croissance d'une seule phase solide : front plan, cellulaire et dendritique (fig. 1.2(a)).

Lors de la coulée d'alliages métalliques, la microstructure obtenue est généralement une structure dendritique colonnaire : la croissance des troncs primaires des dendrites est plus ou moins orientée dans un gradient thermique défini par les conditions expérimentales. En pratique, les dendrites issues de germes différents ont donc des orientations différentes suivant les régions de l'échantillon^(a). Un grain est donc constitué de dendrites issues du même germe et ayant donc la même orientation cristallographique et morphologique. Ces derniers sont délimités par des joints de grains, zone qui correspond au changement d'orientation des dendrites (fig. 1.2(b)). La structure et la répartition des grains définissent la macrostructure de l'échantillon.

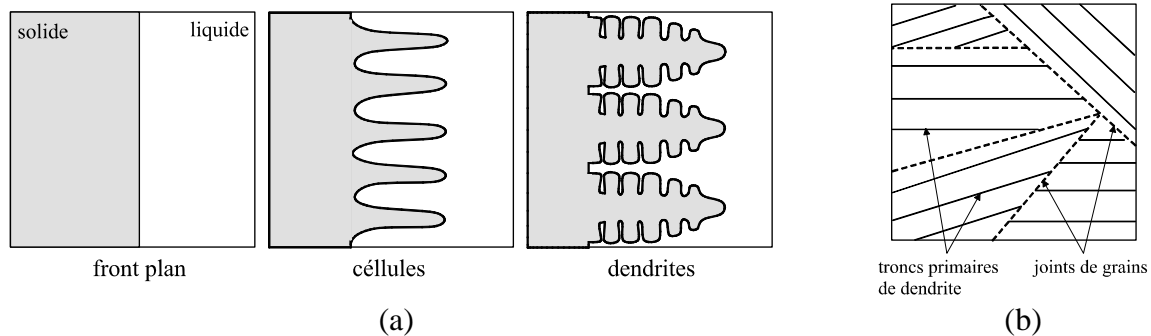


Figure 1.2 : Représentation schématique des différentes morphologies d'interface et des microstructures résultantes (a). Représentation schématique d'une structure macroscopique de grains lors d'une croissance dendritique (b).

Un exemple de développement de la microstructure, lors de la solidification d'un alliage succinonitrile (SCN) - 0.5% acétone, est donné à la figure 1.3(a). Cet alliage organique a la particularité de se solidifier en formant des structures identiques à celles des alliages métalliques. De par sa transparence, il est souvent utilisé pour observer la croissance dendritique. La figure 1.3(b) montre une macrostructure d'un échantillon de cuivre obtenu par coulée continue. On peut y distinguer les différents grains qui composent cette macrostructure.

Lors de la coulée continue d'alliages métalliques, les structures observées sont donc généralement constituées de grains colonnaires, orientés dans le sens du gradient thermique à l'interface solide-liquide, comme le montre la figure 1.3(b). Comme nous l'avons signalé précédemment, le gradient thermique impose une croissance colonnaire dirigée de la surface vers le centre de l'échantillon. Les grains seront relativement allongés dans le sens radial de l'échantillon si le puits liquide est assez profond. On remarquera donc une région centrale de l'échantillon pour laquelle les grains se rejoignent (voir figure 1.3(b)).

(a). Excepté pour des aubes de turbine monocristallines constituées de dendrites issues d'un seul germe et ayant donc toutes la même direction.

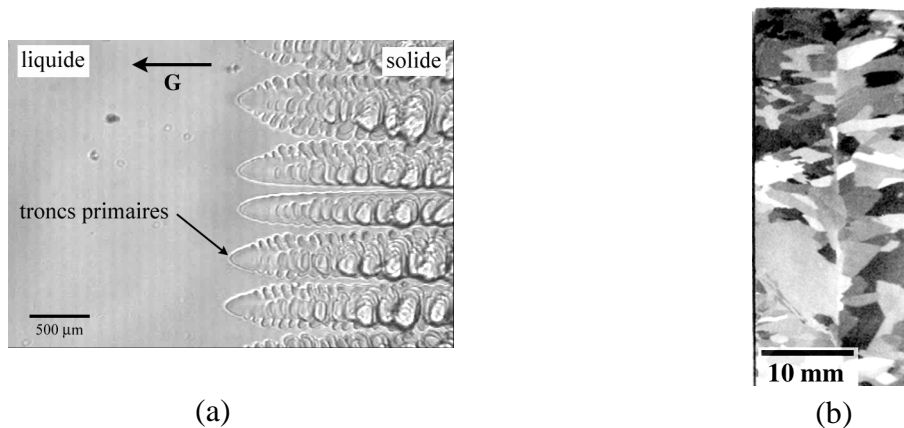


Figure 1.3 : Photographies de la croissance dendritique d'un alliage organique SCN-acétone observé au microscope optique [1] (microstructures identiques aux alliages métalliques) (a) et de la macrostructure d'un échantillon d'alliage de cuivre obtenu par coulée continue (b).

1.3. L’AFFINAGE DE LA STRUCTURE

Une structure composée de grains colonnaires dans un gradient thermique, caractéristique de la coulée continue, peut être source de défauts internes (porosité, fragilité mécanique au centre, ségrégation^(a), etc) et de défauts surfaciques (exsudations^(b), etc) [2]. Dans le but de limiter ces défauts, une microstructure beaucoup plus homogène et isotrope est très souvent souhaitable.

Pour cela, la croissance dendritique équiaxe doit être favorisée. Dans ce cas, les dendrites ont une croissance radiale, chacune formant un grain. Ce mode de croissance équiaxe induit une taille de grain beaucoup plus faible que celle obtenue en croissance colonnaire, ainsi qu'une forme générale des grains plutôt sphérique. L'homogénéité microstructurale induite par la croissance équiaxe, augmente donc l'homogénéité des propriétés physiques, mécaniques et chimiques du matériau. Comme exemple, il a été observé que la diminution de la taille de grain augmente de manière importante les propriétés mécaniques [3].

Les méthodes utilisées pour garantir l'affinage de la structure de coulée, et donc l'augmentation de l'homogénéité du produit, sont généralement :

- l'adjonction de substances inoculantes [4]. Ces substances favorisent la germination et donc la formation de dendrites équiaxes;
- l'emploi de conditions de solidification rapide [5]. La formation de la microstructure étant fortement dépendante de la vitesse de coulée, l'augmentation de cette dernière aura

(a). Rejet d'éléments d'alliages localisé. On parle de microségrégation lorsqu'on considère le rejet de soluté en avant du front de solidification. La macroségrégation désigne des zones du produit obtenu par coulée, pour lesquelles un ou des éléments d'alliage ont une concentration différente que dans le reste de l'échantillon.

(b). Suintement de liquide à la surface de l'échantillon.

- tendance à conduire à une microstructure fine, voire équiaxe [6];
- le brassage électromagnétique [7-9]. L'agitation du liquide, induite par l'action d'un champ magnétique au cours de la solidification, favorise la formation de structures équiaxes par fragmentation de structures dendritiques.

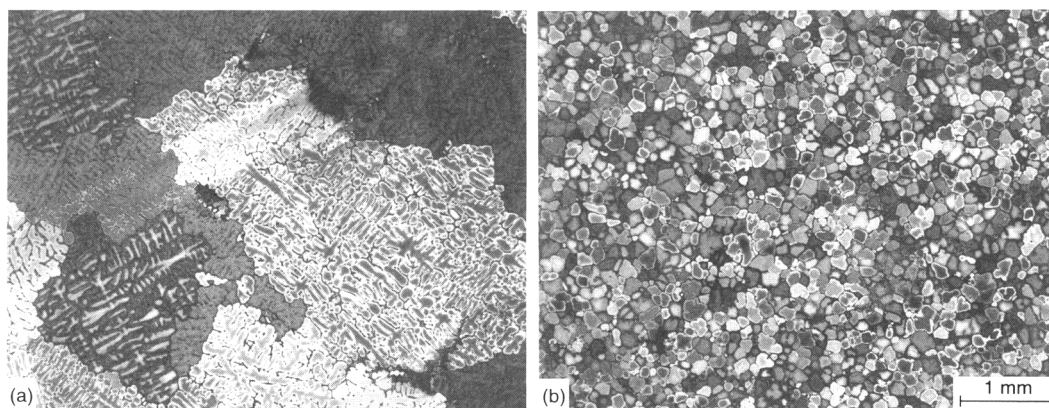


Figure 1.4 : Micrographies de la structure d'un alliage Al-4%Cu sans (a) et avec 0.05% de titane (b) [10].

Un exemple de l'effet de l'ajout de substances inoculantes sur la taille des grains, est donné à la figure 1.4. Il s'agit d'une adjonction de AlTi_5B dans un alliage Al-4%Cu, afin d'obtenir 0.05% de titane [10]. Dans ce cas, l'affinage de la structure est très important, la taille des grains étant réduite de quelques millimètres à moins de 100 μm .

1.4. OBJECTIFS DU TRAVAIL DE RECHERCHE

Le but de ce travail de recherche, mené avec le partenariat d'une entreprise productrice de produits cuivreux semi-finis, Swissmetal, est d'appréhender et de comprendre les différents phénomènes inhérents à l'affinage de grains d'alliages cuivreux par brassage électromagnétique. Les investigations ont été menées sur deux alliages de cuivre industriels, fournis par le partenaire du projet : l'alliage C97, Cu-1%Ni-1%Pb-0.2%P et l'alliage BZ4, Cu-4%Zn-4%Sn-4%Pb (pourcentages poids).

L'effet du brassage électromagnétique sur les structures de coulée industrielle et de solidification Bridgman a été mis en évidence. Pour cela, l'étude de l'effet des différents paramètres expérimentaux de coulée sur la structure, a été réalisée principalement sur une installation de solidification dirigée de type Bridgman, munie d'un système de brassage électromagnétique. Ce procédé, conçu et construit pour ce projet, a été choisi afin d'une part, de contrôler d'avantage la solidification (direction de croissance) et d'autre part de pouvoir étudier l'influence des divers paramètres de façon indépendante, ce qui s'avère impossible sur une installation industrielle de coulée continue.

De plus, le logiciel de simulation numérique, *calcosoft*[®], développé au laboratoire, a été utilisé pour caractériser les mouvements de convection dans le liquide et la zone pâteuse par l'ac-

tion d'un champ magnétique alternatif, ainsi que l'effet de cette convection sur l'histoire thermique des alliages. Les conditions expérimentales pour lesquelles l'affinage de la structure est optimal, ont alors été déterminées pour les alliages C97 et BZ4.

Sur la base des résultats obtenus, les principaux mécanismes d'affinage de grains induit par brassage électromagnétique ont été déterminés. Un modèle simple de prédiction de la transition entre des structures colonnaires et équiaxes (affinées) a été utilisé et comparé aux résultats expérimentaux. L'application de ce modèle a permis d'élaborer une carte de microstructure pour les deux alliages, en fonction des paramètres de coulée, afin de connaître de façon qualitative la structure obtenue. Enfin, l'effet de la convection forcée sur la solidification d'alliages métalliques a été étudiée, privilégiant l'influence de cette convection sur la zone pâteuse^(a) en terme d'étendue, mais aussi de perméabilité^(b). Un critère permettant de prédire la refusion des bras de dendrites a donc été développé, considérant qu'il s'agit du mécanisme prépondérant, responsable de l'affinage de la structure.

Après une revue bibliographique (chap. 2) qui permettra d'introduire les différents concepts abordés dans ce travail de recherche (solidification, brassage électromagnétique, etc...), le chapitre 3 présentera les différents modèles physiques qui ont été utilisés pour caractériser la solidification sous convection forcée. Dans le chapitre 4, les procédures expérimentales suivantes seront détaillées : les analyses thermiques (DTA et SPTA), les expériences de solidification par coulée continue industrielle et de type Bridgman (avec et sans brassage électromagnétique), l'étude des alliages par métallographie et la microscopie électronique à balayage. L'approche expérimentale (chap. 5) s'axe sur quatre différentes techniques : la solidification sous gradient nul, la solidification dirigée sans et avec brassage électromagnétique, et enfin, la modélisation numérique. La première permettra de déterminer l'évolution de la fraction de solide avec la température pour chacun des deux alliages et de caractériser la nature des composés qui précipitent au cours de la solidification. L'effet du brassage électromagnétique sur les structures de coulée sera étudié expérimentalement à l'aide d'un four de solidification dirigée permettant la création d'un champ magnétique alternatif. Les résultats ainsi obtenus pourront alors être comparés aux résultats des simulations numériques. Le chapitre 6 présentera une étude plus approfondie des mécanismes responsables de l'affinage de grains par brassage électromagnétique, déterminant les phénomènes physiques qui permettent la croissance de grains équiaxes. Enfin, la conclusion générale (chap. 7) résumera les divers résultats et réflexions importants.

(a). Région pour laquelle le solide et le liquide coexistent dans des proportions dépendant de la température.

(b). Relatif à la compacité du réseau solide au sein de la zone pâteuse.

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE



2.1. LES ALLIAGES CUIVREUX MULTICOMPOSÉS

La littérature concernant l'étude d'alliages cuivreux multicomposés est assez restreinte. De manière générale, les systèmes étudiés sont souvent des alliages binaires simples. La solidification des alliages multicomposés reste trop spécifique à tel ou tel système industriel. Ceci est bien évidemment dû à la complexité des alliages industriels et à la multitude des alliages spéciaux mis sur le marché. Les ouvrages généraux qui se reportent aux métaux non-ferreux, constituent la majorité de la littérature concernant ces systèmes multiphasés [11-13].

Dans cette partie, nous nous intéresserons en premier lieu aux études menées sur les alliages binaires (Cu-Ni, Cu-Zn, Cu-Sn, Cu-Pb et Cu-P) constituant la base des alliages industriels C97 et BZ4, pour ensuite nous pencher sur quelques alliages cuivreux multicomposés qui se rapprochent de nos systèmes.

2.1.1. Les alliages binaires Cu-Ni, Cu-Zn, Cu-Sn, Cu-Pb et Cu-P constituant des alliages industriels

Le cas de l'alliage Cu-Ni est assez simple : il s'agit d'un système à miscibilité complète dans les phases liquide et solide (voir les diagrammes de phases binaires en annexes). On notera la tendance à une microségrégation négative ($k < 1$). Les structures observées pour des concentrations en nickel supérieures à 0.5% sont de type dendritique [14]. La présence de nickel permet de combiner des propriétés mécaniques élevées obtenues par durcissement structural et une bonne conductibilité électrique [11].

Considérant l'étendue des applications qu'offrent ces alliages, les systèmes Cu-Sn (bronzes) et Cu-Zn (laitons) ont été très étudiés. De tels systèmes caractérisés par une complète miscibilité dans la phase liquide et un coefficient de partage inférieur à 1, ont une microstructure de type dendritique qui change très peu avec la concentration en élément allié [14]. Elle est généralement composée de dendrites de type α (solution solide) et de précipités de phase β localisés aux régions interdendritiques. Dans le cas de systèmes fortement alliés, il est possible d'observer des structures de type péritectique et eutectoïde. Concernant les laitons, ils sont utilisés principalement pour leurs propriétés mécaniques et leur résistance à la corrosion. De leur côté, les bronzes ont la particularité de former des précipités très durs de phase δ , permettant d'améliorer la résistance mécanique.

L'ajout de plomb dans une matrice de cuivre provoque la naissance de globules ou de films localisés autour des grains de cuivre (réaction monotectique) [15]. En effet, le plomb et le cuivre sont pratiquement insolubles et non miscibles. Ces globules ont donc une fonction lubrifiante lors de la mise en forme du matériau et facilitent la formation de copeaux lors de l'usinage.

Enfin, utilisé principalement en trace comme désoxydant puissant, le phosphore réduit énormément la conductivité du cuivre (la divisant par deux pour une concentration de 0.1% poids [15]). La formation de composés Cu_3P en faible quantité, augmente la résistance à la traction. Remarquons que l'ajout de phosphore en quantité plus importante rend l'alliage cassant et fragile [15].

2.1.2. Les alliages multicomposés Cu-Ni-Pb-P et Cu-Zn-Sn-Pb

Les exigences techniques et technologiques augmentant sans cesse, les alliages industriels tentent de cumuler les différentes propriétés des alliages cuivreux binaires. Dans la littérature, seuls quelques alliages se rapprochent de nos compositions.

En plus de l'effet lubrifiant du plomb sur le cuivre, l'ajout de nickel améliore les propriétés mécaniques de l'alliage et compense la ségrégation du plomb [16]. Comme dans le cas des bronzes, il est possible de durcir encore l'alliage en incorporant de faibles quantités de phosphore. En effet, outre son pouvoir désoxydant, le phosphore est susceptible de former des composés Cu_3P et/ou Ni_xP_y aux zones de ségrégation. Ce système correspondrait donc à l'alliage C97. Il n'existe pas de classification précise correspondant à cet alliage. La composition en cuivre étant supérieure à 96% poids, la température du liquidus est très voisine de la température de fusion du cuivre pur (1084.8°C). La température du solidus devrait être voisine de 950°C à cause de la présence du plomb à 1% poids (alliage noté C18700 dans la classification internationale ASM, 99%Cu-1%Pb [12]).

Chaque élément ajouté aux bronzes a une fonction précise. Le zinc a de son côté l'avantage d'être également un désoxydant, certes moins puissant que le phosphore, mais beaucoup moins cher. On peut donc trouver des alliages 85%Cu-5%Sn-5%Zn-5%Pb, couramment appelés "lead gunmetal 85/5/5/5" [14] ou "lead red brass" [12] (classification ASM : alliage C83600). On y retrouve également le plomb assurant la lubrification et la fonction de brise-copeaux lors de la mise en forme. Cet alliage est très proche en composition du BZ4 (Cu-4%Sn-4%Zn-4%Pb). Les températures du liquidus et du solidus donnés par les références [14] et [12] sont respectivement de 1002 et 1010 °C, et de 762 et 855 °C.

2.2. STRUCTURES DE COULÉE

2.2.1. Notions d'interface solide-liquide et d'instabilités

Le mécanisme de solidification d'un métal conduit à un changement d'état thermodynamique : de l'état liquide désordonné à l'état solide cristallin. Ce changement d'état requiert une réorganisation atomique initiée par des germes solides qui se forment dans le liquide. Il se crée

alors, au sein du métal, une interface liquide-solide dont la morphologie dépend de sa stabilité au cours de la solidification. On définit couramment 3 différents types d'interfaces : plane, cellulaire et dendritique.

Notion de germination

Le phénomène de germination est un processus hors équilibre qui nécessite de vaincre l'énergie de surface ainsi créée, à l'interface solide-liquide. L'apport d'énergie est obtenu par maintien de la zone liquide en surfusion, c'est à dire à une température inférieure à la température initiale du bain liquide. Cette différence de température est appelée surfusion de germination, ΔT_n . On distingue alors deux types de germination :

- germination homogène : le germe se forme directement dans un liquide sans particules solides et sans contact (pas de contenant). Ce type de germination n'existe pas dans la réalité, elle ne sera donc pas développée. En effet même dans un liquide pur, il subsistera toujours un faible pourcentage d'impureté.
- germination hétérogène : la présence de particules dans le liquide tend à diminuer la barrière énergétique (énergie d'activation) qu'un germe doit franchir pour croître.

Au cours de la solidification, on définit un taux de germination I qui suit une loi de type Arrhenius [6] :

$$I = I_0(N_0 - N)\exp\left(-\frac{\Delta G_n}{k_B T}\right) \quad (2.1)$$

où I_0 est une constante (par exemple de l'ordre de 10^{20} s^{-1} pour les métaux [6]), N_0 le nombre total de sites de germination par unité de volume, N le nombre de sites activés, ΔG_n l'énergie d'activation, k_B la constante de Boltzmann et T la température. Dans son approche de la germination hétérogène, Hunt a admis que pour de faibles surfusions : $\Delta G_n/k_B T \propto a/(\Delta T)^2$; où ΔT est la surfusion imposée au système et a une constante qui va dépendre du système considéré et qui peut s'estimer comme : $a = -(\Delta T_n)^2 \ln(N_0 \times 10^{20})$. Le taux de germination dépend donc des conditions de refroidissement (nombre de sites activés, surfusion) et des propriétés du matériau (nombre de sites de germination, surfusion de germination).

Instabilités de l'interface

Considérons le cas d'un alliage binaire de concentration en élément d'alliage C_0 et d'une interface plane avançant avec une vitesse V en régime stationnaire. Au cours de la solidification de l'alliage, la solubilité inférieure du solide (le coefficient de partage, k , est inférieur à 1 (fig. 2.2)) induit un rejet du soluté en avant de l'interface. Ce rejet est localisé dans une couche limite δ_c caractérisée par la diffusion du soluté dans le liquide D_l , et la vitesse d'avance de l'interface V , $\delta_c = D_l/V$. Le profil de concentration résultant est schématisé sur la figure 2.1(a). La concentration du soluté dans cette couche limite décroît exponentiellement avec la distance x de C_0/k à C_0 :

$$C(x) = C_0 + \left(\frac{C_0}{k} - C_0 \right) \exp\left(-\frac{Vx}{D_l}\right) \quad (2.2)$$

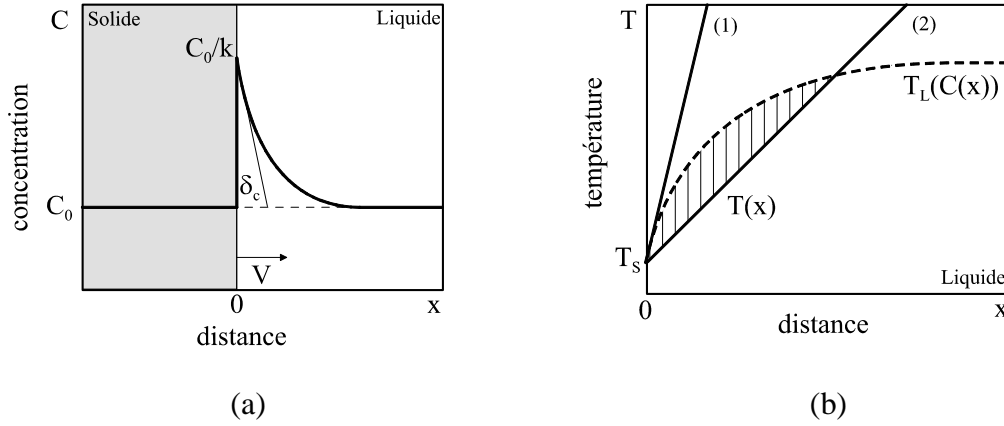


Figure 2.1 : Profils de concentration (a) et de température (b) à l'interface solide-liquide. Le rejet de soluté est localisé dans la zone liquide en avant de l'interface (a). On peut observer sur la figure (b) les conditions pour lesquelles le système reste stable (1) ou se retrouve en surfusion constitutionnelle (2) (partie hachurée).

En accord avec le diagramme de phase (fig. 2.2), la température du liquide est décrite par la relation :

$$T_L(C(x)) = T_L + m(C(x) - C_0) \quad (2.3)$$

T_L et m correspondent respectivement à la température et à la pente du liquidus.

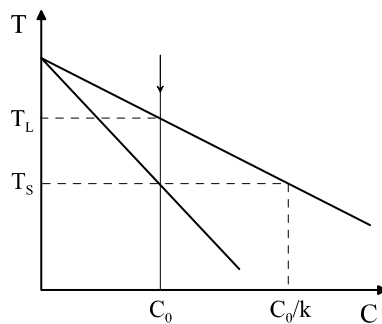


Figure 2.2 : Représentation schématique d'un diagramme de phase binaire ($k < 1$).

La stabilité de cette interface va alors dépendre de l'évolution de la température $T(x)$ imposée par le flux de chaleur présent lors de la solidification. On distingue deux cas (fig. 2.1(b)):

- (1) : si $T(x)$ est supérieure à $T_L(C(x))$ localement, la situation reste stable, le front de solidification est plan.

- (2) : si $T(x)$ est inférieure à $T_L(C(x))$ localement, la situation devient instable, le front de solidification se déstabilise. Cette condition d'instabilité est appelée surfusion constitutionnelle, car elle dépend uniquement du rejet de soluté dans un gradient thermique donné.

Plus précisément on définit un gradient thermique à l'interface :

$$G = \left(\frac{dT(x)}{dx} \right)_{x=0}$$

qui permet de déterminer les conditions de stabilité et d'en déduire les morphologies de l'interface qui en découle (Tableau 2.1). La déstabilisation de cette interface conduit à la formation de microstructures cellulaires ou dendritiques au cours de la solidification. Deux classes de croissance peuvent être définies :

- la croissance sous contrainte (solidification dirigée, $G > 0$) qui correspond à une extraction de chaleur unidirectionnelle. Les dendrites croissent, en général, de manière colonnaire dans la direction du gradient thermique créé, en suivant l'avance des isothermes (cas de la figure 2.1(b)).

Tableau 2.1: Conditions de stabilité dans le cas d'une solidification dendritique colonnaire pour un alliage binaire. $\Delta T_0 = T_L - T_S = (mC_0(k-1))/k$.

Gradient thermique	Solidification dirigée $G > 0$
$G > \frac{\Delta T_0}{D_l/V}$	stable
$G < \frac{\Delta T_0}{D_l/V}$	instable

- la croissance non contrainte (solidification équiaxe, $G < 0$) qui correspond à une extraction de chaleur radiale homogène autour du germe, dans un liquide en surfusion. La dendrite croît de manière équiaxe jusqu'à sa rencontre avec une voisine. Il est à noter qu'une croissance équiaxe peut avoir lieu dans un gradient thermique positif, c'est le cas lors de la transition colonnaire-équiaxe (voir le paragraphe 2.2.3).

2.2.2. Développement des microstructures dendritiques

Cinétique de croissance

La cinétique de croissance d'une dendrite est fortement dépendante des phénomènes qui interviennent au voisinage de sa pointe. Ces derniers peuvent être résumés par la notion de surfusion de la pointe de la dendrite, ΔT^* , qui, pour des vitesses pas trop élevées, somme les écarts à

l'équilibre du point de vue thermique, ΔT_t , chimique, ΔT_c , (rejet de chaleur et de soluté) et de la courbure, ΔT_r (voir figure 2.3):

$$\Delta T^* = \Delta T_t + \Delta T_c + \Delta T_r \quad (2.4)$$

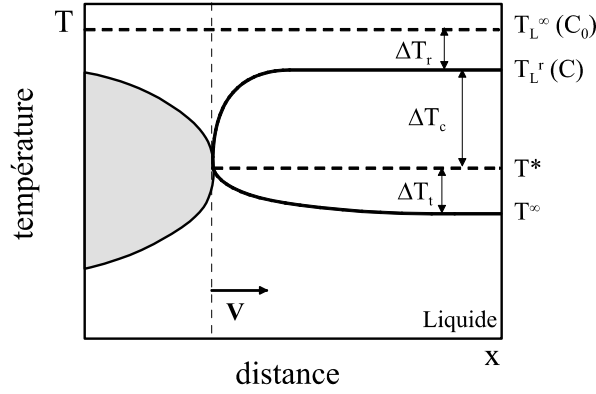


Figure 2.3 : Illustration des différentes contributions qui constituent la surfusion de la pointe de dendrite (relation (2.4)).

La surfusion thermique est principalement due au rejet de chaleur latente, c'est à dire lorsque le gradient thermique dans le liquide est négatif (solidification équiaxe).

La surfusion chimique correspond au phénomène de surfusion constitutionnelle vu précédemment, donc au rejet de soluté en avant de l'interface :

$$\Delta T_c = m(C_0 - C_l^*) \quad (2.5)$$

C_l^* est la concentration du liquide à l'interface (l'astérisque se rapportant à ce qui est à l'interface). La surfusion de courbure prend en compte les phénomènes de tension de surface qui existent à l'interface :

$$\Delta T_r = \Gamma K^* \quad (2.6)$$

Γ est le coefficient de Gibbs-Thomson, $\Gamma = \sigma / \Delta S_f$, où σ correspond à l'énergie interfaciale solide-liquide et ΔS_f à l'entropie de fusion. K^* est la courbure de l'interface.

Remarquons que la surfusion thermique, ΔT_t , peut être négligée devant l'effet de la surfusion chimique, ΔT_c , pour la plupart des alliages métalliques industriels. En effet, la diffusivité thermique ($\sim 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$) est beaucoup plus importante que la diffusion chimique ($\sim 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$). On peut donc réécrire la relation (2.4) :

$$\Delta T^* = \Delta T_c + \Delta T_r = T_L - T^* \quad (2.7)$$

T^* correspond à la température de la pointe de dendrite. Il s'agit alors de déterminer l'effet du rejet de soluté à la pointe de la dendrite et l'effet de sa courbure sur la morphologie de croissance.

Pour rendre compte de la diffusion à la pointe de la dendrite (cas du champ de diffusion stationnaire), on définit un nombre, le nombre de Péclet, qui correspond au rapport de la dimension caractéristique du système, R (le rayon de courbure de la dendrite) et de la distance de diffusion du soluté δ_c :

$$Pe = \frac{RV}{2D_l} \quad \text{avec} \quad \delta_c = 2D_l/V \quad (2.8)$$

La solution mathématique à ce problème de champ de diffusion (résolution de l'équation de bilan de soluté) a été élaborée par Ivantsov [17] dans le cas d'une pointe parabolique :

$$\Omega = Iv(Pe) \quad (2.9)$$

avec,

$$\Omega = \frac{C_l^* - C_0}{C_l^*(1-k)}$$

$$Iv(Pe) = Pe \exp(Pe) E_1(Pe)$$

Ω est défini comme la sursaturation, $Iv(x)$ correspond à la fonction d'Ivantsov et $E_1(x)$ est la fonction exponentielle intégrale. Pour un développement complet de la solution d'Ivantsov la référence [18] peut être consultée. Remarquons qu'à ce stade de l'analyse, il est impossible de calculer R indépendamment de V .

Dans le but de déterminer la morphologie de la pointe de la dendrite, un critère de stabilité marginale a été introduit par Langer et Müller-Krumbhaar en 1977 [19]. En tenant compte de l'effet de la courbure, il a été proposé que la dendrite croît avec un rayon de courbure équivalent à la longueur d'onde de la stabilité marginale, λ_i :

$$R = \lambda_i = 2\pi \sqrt{\frac{\Gamma}{mG_c - G}} \quad (2.10)$$

G_c correspond au gradient chimique (soluté) à la pointe de la dendrite dans le liquide, de l'élément d'alliage considéré : $D_l G_c = -VC_l^*(1-k)$. Désormais il est donc possible de calculer R ou T^* indépendamment de V en utilisant les relations (2.9) et (2.10).

Le modèle KGT (Kurz, Giovanola, Trivedi [20]) combine alors la solution d'Ivantsov et le critère de stabilité marginale, dans le cas d'alliages binaires pour déterminer l'évolution du rayon de courbure, de la température à la pointe de la dendrite et de l'espacement primaire de dendrite avec la vitesse de croissance (fig. 2.4). Les microstructures susceptibles d'être rencontrées peuvent être déduites de ces courbes d'évolution comme le montre la figure 2.4(b). A faible vitesse de croissance, l'interface reste stable. A la valeur correspondant à la surfusion constitutionnelle, le front se déstabilise et conduit à la naissance de cellules puis de dendrites.

Remarquons qu'à haute vitesse, l'interface se stabilise une nouvelle fois, on atteint alors la stabilité absolue (pour plus de détails sur ce phénomène se reporter à la référence [20]).

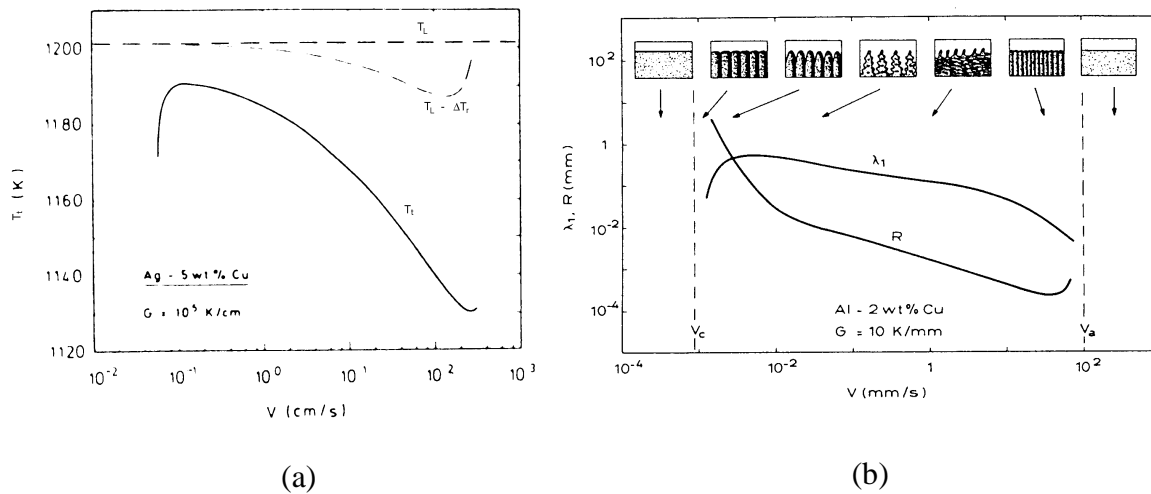


Figure 2.4 : Evolution de la température de la pointe de dendrite (noté T_i sur la figure) avec la vitesse de croissance, pour l'alliage Ag-5%Cu (a) [20]. Représentation des microstructures déduites de l'évolution du rayon de courbure de la pointe de dendrite et de l'espacement primaire des bras de dendrite avec la vitesse de croissance pour un alliage Al-2%Cu (b) [18]. Ces exemples ont été obtenus par le modèle KGT.

Dans le cas d'alliages multicomposés, l'effet de chaque élément d'alliage doit être pris en compte. Les modèles, qui ont été vus dans le cas d'alliages binaires, doivent donc être adaptés. Sur la base des travaux de Rappaz et Boettinger [21], l'étude de la cinétique de croissance des dendrites pour des alliages multicomposés sera développée, en détail, dans le chapitre suivant.

Espacements primaires et secondaires des bras de dendrite

La figure 2.5 illustre les grandeurs caractéristiques qui définissent la microstructure dendritique. On peut noter le rayon de courbure de la pointe, R , ainsi que λ_1 et λ_2 qui correspondent respectivement aux espacements entre les troncs primaires et secondaires. La microstructure, et donc la variation de ces paramètres, ont une influence prépondérante sur les propriétés des matériaux (propriétés mécaniques par exemple).

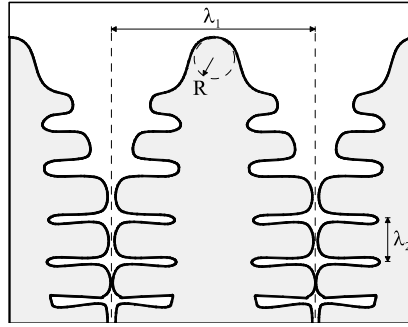


Figure 2.5 : Représentation des caractéristiques principales qui définissent les dendrites.

Les modèles de prédiction de l'espacement primaire s'accordent à dire qu'il est une fonction de l'étendue de la zone pâteuse, du gradient thermique et de la vitesse de croissance des dendrites [22]. La relation généralement utilisée est la suivante :

$$\lambda_1 = 4.3 \left(\frac{D_l \Gamma \Delta T_0}{k} \right)^{1/4} V^{-1/4} G^{-1/2} \quad (2.11)$$

Les bras secondaires, de leur côté, évoluent de manière conséquente depuis leur naissance jusqu'à leur dimension finale. Reprenant les travaux de Kattamis et Flemings [23], Feurer et Wunderlin [24] ont développé un modèle basé sur le phénomène de maturation pour calculer λ_2 selon l'équation générale :

$$\lambda_2 = 5.5 (M t_f)^{1/3} \quad (2.12)$$

avec

$$M = \frac{\Gamma D_l \ln \left(\frac{C_l}{C_0} \right)}{m(1-k)(C_l - C_0)} \quad \text{et} \quad t_f = \frac{\Delta T'}{|T|} = \frac{\Delta T'}{|GV|} \quad (2.13)$$

où M est un facteur de maturation, t_f le temps de solidification, C_l correspond à la concentration finale du liquide en soluté et $\Delta T'$ à la différence de température entre la pointe de la dendrite et la température du solidus. Remarquons qu'en première approximation on peut considérer que $\Delta T' = \Delta T_0$.

En ce qui concerne la prédiction des espacements secondaires de bras de dendrites, pour des systèmes multicomposés, le coefficient de maturation doit prendre en compte la variation de la concentration du liquide et le coefficient de diffusion pour chaque élément d'alliage [21]. Comme précédemment, un développement plus détaillé sera exposé dans le chapitre suivant pour le cas des alliages multicomposés.

2.2.3. Transition colonnaire-équiaxe

Il a été vu précédemment que dans le cas d'une croissance dendritique, deux modes peuvent être distingués : la croissance colonnaire (solidification dirigée) et la croissance équiaxe (solidification non-contrainte). La transition entre ces deux modes de croissance est fonction de l'évolution des conditions thermique et solutale au cours de la solidification. Cette transition, appelée transition colonnaire-équiaxe (ou "columnar to equiaxed transition", CET), a un impact très prononcé sur les propriétés intrinsèques du matériau puisque la microstructure résultante est complètement différente (voir chapitre 1).

Considérons le cas simple d'un front colonnaire dendritique avançant à une vitesse V dans un gradient thermique G (fig. 2.6). La croissance des dendrites induit une zone en surfusion, $\Delta T^* = T_L - T^*$, en avant du front (voir §2.2.2). Deux cas peuvent alors être distingués :

- la surfusion est inférieure à la surfusion de germination (surfusion nécessaire pour qu'il y ait germination) : la croissance reste colonnaire;
- la surfusion est supérieure à la surfusion de germination : des grains équiaxes vont se développer en avant de l'interface, dans la zone en surfusion (fig. 2.6).

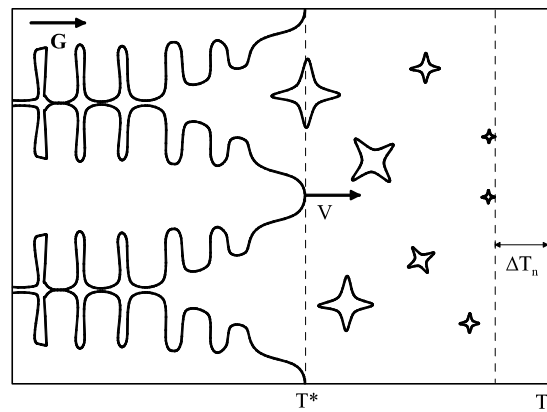


Figure 2.6 : Représentation schématisée de la transition colonnaire équiaxe. Dans ce cas, la surfusion colonnaire étant supérieure à la surfusion de germination, la germination en avant du front peut avoir lieu et conduire à une structure équiaxe.

Contrairement au mécanisme relativement simple qui vient d'être exposé, le phénomène de transition colonnaire-équiaxe reste un processus complexe dans lequel intervient la germination, les cinétiques de croissances colonnaires et équiaxes, les directions de croissances préférentielles ainsi que l'effet de la convection du liquide et le transport de soluté qui en découle. La majorité des travaux concernant la CET tendent à définir une méthode de prédiction de cette transition. S'appuyant sur des modèles qualitatifs [25], ces méthodes sont basées sur un modèle mixte de germination hétérogène et de croissance dendritique. Différentes approches ont été utilisées : analytique et numérique.

Hunt a établi un critère analytique de transition relativement simple. Ce critère, basé sur la valeur du gradient thermique à l'interface, prend en compte d'une part le nombre de sites de ger-

mination par unité de volume, N_0 , et d'autre part le rapport entre la surfusion de germination et la surfusion constitutionnelle [6]. Utilisant la notion de fraction volumique étendue de cristaux équiaxes,

$$\phi_E = \frac{4\pi r^3 N_0}{3} \quad (2.14)$$

où r est le rayon d'un grain équiaxe, un critère de croissance est défini : complètement colonnaire si $\phi_E < 0.0066$, complètement équiaxe si $\phi_E > 0.66$. Considérons le rayon, r , d'un grain obtenu par intégration de la vitesse d'un grain équiaxe :

$$\begin{aligned} r &= \int_0^t V_e dt \\ &= \frac{A(\Delta T^3 - \Delta T_n^3)}{3VG C_0} \end{aligned} \quad (2.15)$$

où la vitesse de croissance d'un grain équiaxe, donnée par celle des pointes de la dendrite, est estimée en utilisant un modèle approximatif du type KGT présenté auparavant : $V_e = A(\Delta T)^2 / C_0$. La vitesse de refroidissement est définie comme $dT/dt = -GV = -d(\Delta T)/(dt)$ [18]. A est une constante de croissance qui dépend du système considéré, ΔT est la surfusion locale. En combinant les équations (2.14) et (2.15) dans le cas d'une croissance colonnaire (la surfusion de croissance du front colonnaire équivaut à $\Delta T_{col} = (VC_0/A)^{1/2}$) on obtient un critère basé sur la valeur du gradient thermique. Dans le cas d'une structure colonnaire G doit être :

$$G > 0.617(100N_0)^{1/3} \left(1 - \frac{\Delta T_n^3}{\Delta T_{col}^3} \right) \Delta T_{col} \quad (2.16)$$

Dans le cas d'une croissance équiaxe, nous avons :

$$G < 0.617(N_0)^{1/3} \left(1 - \frac{\Delta T_n^3}{\Delta T_{col}^3} \right) \Delta T_{col} \quad (2.17)$$

Tout ceci est valable sous certaines hypothèses simplificatrices :

- le transport du soluté est considéré uniquement par diffusion (sans convection);
- on considère des sites de germination hétérogènes aléatoirement distribués qui sont activés dès que la surfusion en avant du front de solidification est supérieur à ΔT_n ;
- la croissance d'un grain équiaxe est sphérique;
- la thermique est stationnaire, la vitesse de croissance du front colonnaire et le gradient thermique sont donc constants;
- on ne prend pas en compte les effets de la convection, pour plus de détails voir [26].

A partir des équations (2.16) et (2.17) des cartes de microstructure peuvent donc être calculées pour chaque système considéré. Généralement la croissance équiaxe est favorisée si la vitesse de solidification, la concentration en élément d'alliage, ainsi que le nombre de sites de

germination sont augmentés, et si la surfusion de germination ou le gradient thermique sont diminués.

Par la suite, Flood a développé un modèle numérique en utilisant une description moins simplifiée des échanges thermiques entre la croissance et l'avance du front de solidification [27]. S'inspirant du modèle de Hunt, le développement numérique de Gaumann complète son étude, en s'intéressant plus précisément à la germination [28]. Wang considère une approche par différences finies pour résoudre le problème [29]. Il est important de noter que les modèles présentés sont uniquement valables dans le cas d'une croissance orientée parallèlement au flux de chaleur.

Dans le but de déterminer des cartes de microstructure concernant la solidification de superralliages, Gaumann a alors adapté le modèle de Hunt, en tenant compte de l'orientation de la croissance [30]. De la même façon, Gandin a développé un modèle d'automate cellulaire permettant de tenir compte, entre autre, de la désorientation de la croissance dendritique par rapport à l'avance des isothermes [31]. Couplé à des calculs de flux de chaleur par élément finis, cette approche a été complétée par un outil numérique de prédiction de la structure de grain en 2D puis en 3D [32].

La CET est d'un grand intérêt pour l'industrie. Cependant ce phénomène est d'une complexité accrue par la diversité des conditions de coulée qui l'induisent (ajout d'inoculants, effet de la vitesse de refroidissement, solidification sous convection naturelle ou forcée). C'est la compréhension des mécanismes mis en jeu lors de la CET qui nous permettra d'expliquer en détail l'affinage de la structure de coulée.

2.2.4. Microségrégation et fraction de solide

Considérons la solidification d'un alliage binaire de composition nominale C_0 . Il a été vu précédemment qu'une interface solide-liquide avançant à une vitesse donnée rejette du soluté dans le liquide. Dans le cas de l'équilibre thermodynamique, la diffusion dans le solide et dans le liquide est supposée infiniment rapide. Au cours de la solidification, le premier cristal apparaîtrait donc à la température du liquidus, T_L , et la dernière goutte de liquide se solidifierait à la température du solidus, T_S . La composition du liquide à l'équilibre est alors donnée par la loi des leviers :

$$C_l = \frac{C_0}{1 - (1 - k)f_s} \quad (2.18)$$

où f_s correspond à la fraction de solide, c'est-à-dire à la proportion de solide dans l'échantillon au cours de la solidification. Cette fraction de solide vaut 1 lorsque l'échantillon est entièrement solide et 0 lorsqu'il est liquide. En utilisant la définition du diagramme de phase, à savoir $T = T_m + mC_l$ (remarquons qu'à la température du liquidus $C_l = C_0$), on peut déduire de la relation (2.18), la fraction de solide en fonction de la température :

$$f_s = \left(\frac{1}{1 - k} \right) \left(\frac{T_L - T}{T_m - T} \right) \quad (2.19)$$

où T_m est la température de fusion du corps pur. Cependant, dans la réalité, la solidification est un phénomène hors équilibre, notamment en raison des phénomènes de diffusion chimique. Gulliver [33] puis Scheil [34] ont donc proposé un modèle rendant compte d'une manière simplifiée du rejet de soluté dans le liquide. En effet, le modèle suppose une diffusion nulle dans le solide mais infinie dans le liquide. En écrivant le bilan de soluté dans ce cas, la composition du liquide et la fraction solidifiée peuvent s'écrire respectivement :

$$C_l = \frac{C_0}{(1 - f_s)^{(1-k)}} \quad (2.20)$$

$$f_s = 1 - \left(\frac{T_m - T}{T_m - T_L} \right)^{\left(\frac{1}{k-1} \right)} \quad (2.21)$$

D'un autre point de vue, il est bien connu que la diffusion chimique dans le solide n'est pas nulle dans les métaux. Brody et Flemings ont tenu compte de cette diffusion dans le solide dans leur modèle [35]. Pour rendre compte de cette rétro-diffusion, il faut introduire le nombre de Fourier $\alpha = D_S t_f / (\lambda_{2,f})^2$, où D_S correspond au coefficient de diffusion dans le solide, t_f est le temps de solidification et $\lambda_{2,f}$ l'espacement interdendritique secondaire en fin de solidification. Ce modèle a été ré-évalué par Clyne et Kurz sur la base d'un nouveau coefficient α' , car le modèle de Brody et Flemings était invalide pour une diffusion importante dans le solide [36]. En tenant compte de ces considérations, le système d'équations permettant de caractériser la concentration du liquide et la fraction de solide est :

$$\alpha' = \alpha \left[1 - \exp\left(\frac{-1}{\alpha}\right) \right] - \frac{1}{2} \exp\left(\frac{-1}{2\alpha}\right) \quad (2.22)$$

$$C_l = C_0 (1 - f_s (1 - 2\alpha'k))^{\left(\frac{k-1}{1-2\alpha'k} \right)} \quad (2.23)$$

$$f_s = \frac{1}{1 - 2\alpha'k} \left[1 - \left(\frac{T_m - T}{T_m - T_L} \right)^{\left(\frac{1-2\alpha'k}{k-1} \right)} \right] \quad (2.24)$$

On peut ainsi retrouver les cas asymptotiques décrits par le modèle de Scheil et la loi des leviers en choisissant une valeur de α' respectivement égale à 0 et 0.5, ou α égale à 0 et ∞ respectivement. Remarquons que la solution exacte du modèle de Brody-Flemings a été déterminée par Kobayashi [37].

Dans le cas de la solidification d'alliages multicomposés, les modèles présentés peuvent être adaptés en tenant compte de la concentration de chaque élément d'alliage. Ces concentrations sont alors définies par la loi des leviers, le modèle de Scheil et celui de Clyne-Kurz respectivement :

$$C_{l,i} = \frac{C_{0,i}}{1 - (1 - k_i)f_s}$$

$$C_{l,i} = \frac{C_{0,i}}{(1 - f_s)^{(1 - k_i)}}$$

$$C_{l,i} = C_{0,i}(1 - f_s(1 - 2\alpha'k_i))^{\left(\frac{k_i - 1}{1 - 2\alpha'k_i}\right)}$$

avec,

$$T = T_m + \sum_{i=1}^n m_i C_{l,i}$$

où $C_{l,i}$, $C_{0,i}$ et k_i sont la concentration du liquide, la concentration initiale et le coefficient de partage correspondant à l'élément d'alliage i , respectivement. Le modèle, qui permettra de calculer l'évolution de la fraction de solide pour nos alliages cuivreux multicomposés, sera développé dans le chapitre suivant.

2.3. L'AFFINAGE DE GRAINS PAR EMS : LA MHD APPLIQUÉE AUX LIQUIDES MÉTALLIQUES

La magnétohydrodynamique (MHD) étant un domaine assez étendu pour constituer une science en elle-même, seule son application à la solidification des alliages métalliques sera abordée ici. Sans avoir la prétention d'étudier avec précision ce phénomène, cette partie retrace les principes de base utilisés en MHD et certains travaux concernant l'étude des mouvements de convection induits par champ magnétiques dans la métallurgie et leur influence sur la solidification. L'accent sera bien évidemment mis sur le phénomène d'affinage de grains induit par convection forcée.

2.3.1. Electromagnétisme et convection : principes généraux

Electromagnétisme

En MHD, le comportement électromagnétique d'un fluide conducteur est régi par les équations de Maxwell, en considérant l'approximation quasi-statique [38, 39] :

$$\nabla \mathbf{B} = 0 \quad (2.25)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.26)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} \quad (2.27)$$

$$\mathbf{j} = \sigma_e (\mathbf{E} + \mathbf{u} \times \mathbf{B}) \quad (2.28)$$

où \mathbf{B} est le champ magnétique, \mathbf{E} le champ électrique, t le temps, μ_0 la perméabilité magnétique (dans le vide $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Hm}^{-1}$), \mathbf{j} la densité de courant électrique, σ_e la conductivité électrique et \mathbf{u} la vitesse du fluide. Ces relations correspondent respectivement à l’équation exprimant la conservation du flux d’induction magnétique, la loi de Faraday, la loi d’Ampère et la loi d’Ohm. Remarquons qu’en MHD le système d’équation de Maxwell est simplifié. En effet, l’approximation quasi-statique consiste à négliger le terme correspondant au courant de déplacement $\mu_0 \epsilon_0 (\partial \mathbf{E} / \partial t)$, qui est ajouté au terme de densité de courant dans la loi d’Ampère générale. On peut montrer également, que l’on peut négliger totalement l’équation de Poisson $\nabla \cdot \mathbf{E} = q / \epsilon_0$ (q et ϵ_0 sont respectivement la densité de charge électrique et permittivité diélectrique) [40].

En combinant ces équations, la relation décrivant l’évolution du champ magnétique dans un fluide conducteur s’écrit :

$$\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = \nabla \times (\mathbf{u} \times \mathbf{B}) + \eta \nabla^2 \mathbf{B} \quad (2.29)$$

dans laquelle le premier membre reflète le fait que les mouvements au sein du liquide peuvent amplifier ou réduire l’intensité du champ et le second exprime la dissipation par effet Joule des éventuelles fluctuations du champ magnétique. η est la diffusivité magnétique, $\eta = 1 / \mu_0 \sigma_e$. On donne généralement un ordre de grandeur pour ces deux termes :

$$\begin{aligned} \nabla \times (\mathbf{u} \times \mathbf{B}) &\sim \frac{uB}{L} \\ \eta \nabla^2 \mathbf{B} &\sim \frac{\eta B}{L^2} \end{aligned}$$

L étant une dimension caractéristique du système. On définit alors le rapport entre les deux termes (les phénomènes liés à la convection et à la diffusion), le nombre de Reynolds magnétique, R_m :

$$R_m = \frac{uL}{\eta} \quad (2.30)$$

Si $R_m \gg 1$, le régime est dominé par la convection et si $R_m \ll 1$, les effets diffusifs l’emportent. Pour exemple, on notera que dans le cas d’alliages métalliques à l’échelle du laboratoire, R_m ne dépasse pas 10^{-2} , alors qu’à l’échelle de la Terre et de l’astrophysique, R_m vaut respectivement 10^4 et de 10^{10} à 10^{20} [41].

Convection

Dans le but de caractériser le comportement d'un fluide métallique (on considère un fluide incompressible, i.e. $\rho_l = \text{constante}$), on définit respectivement les équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement (Navier-Stokes) :

$$\nabla \mathbf{u} = 0 \quad (2.31)$$

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\frac{1}{\rho_l} \nabla p + \nu \nabla^2 \mathbf{u} + \mathbf{F}_{ext} \quad (2.32)$$

p est la pression et ν la viscosité cinématique ($\nu = \mu/\rho_l$ où μ est la viscosité dynamique et ρ_l la masse spécifique du liquide). \mathbf{F}_{ext} correspond à la somme des forces extérieures appliquées au fluide, c'est à dire dans notre cas les forces de gravité, \mathbf{g} , et les forces induites par le champ électromagnétique (force de Lorentz). \mathbf{F}_{ext} s'écrit alors :

$$\mathbf{F}_{ext} = \mathbf{g} + \frac{1}{\rho_l} (\mathbf{j} \times \mathbf{B}) \quad (2.33)$$

On définit un nombre sans dimension, le nombre de Reynolds Re , qui rend compte du rapport entre les forces d'inertie par unité de volume (env. $\rho_l u^2/L$) et les forces visqueuses par unité de volume (env. $\rho_l \nu |u|/L^2$) [40] :

$$Re = \frac{uL}{\nu} \quad (2.34)$$

Si nous prenons le cas d'un liquide métallique typique ($\nu \approx 10^{-7} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) qui est animé d'un mouvement de convection de vitesse maximale de l'ordre de 1 ms^{-1} , dans une cavité de 10 cm de large, le nombre de Reynolds vaut alors 10^6 . Le régime d'écoulement est donc complètement turbulent, ce qui est généralement le cas lors du brassage de métaux liquides.

Nombres caractéristiques sans dimensions de la MHD

Outre le nombre de Reynold et le nombre de Reynolds magnétique, plusieurs nombres adimensionnels sont utilisés en MHD. Ils vont permettre d'établir des comparaisons entre les diverses contributions appliquées au fluide. Pour caractériser l'effet du champ magnétique sur le comportement du fluide, les nombres adimensionnels suivants sont définis respectivement comme le nombre d'Alfvén, le paramètre d'interaction, le nombre d'Hartmann et le paramètre d'écran :

$$A = \frac{u}{B(\mu_0 \rho)^{-1/2}} \quad (2.35)$$

$$N = \frac{\sigma_e B^2 L}{\rho u} \quad (2.36)$$

$$Ha = \sqrt{N \cdot Re} = BL \sqrt{\frac{\sigma_e}{\rho \nu}} \quad (2.37)$$

$$R_\omega = \mu_0 \sigma_e \omega L^2 \quad (2.38)$$

ω est la pulsation ($\omega = 2\pi f$ où f est la fréquence d'induction). Leur signification est [38] :

A^2 = force d'inertie / force magnétique

N = force magnétique / force d'inertie

Ha^2 = force magnétique / force de frottement

R_ω = (longueur caractéristique / longueur de pénétration du champ magnétique)²

En effet, on peut estimer les différentes contribution comme :

- la force d'inertie : $\rho_l ((\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u}) \sim \frac{\rho_l u^2}{L}$
- la force magnétique : $\mathbf{j} \times \mathbf{B} \sim \frac{1}{\mu_0} (\nabla \times \mathbf{B} \cdot \mathbf{B}) \sim \frac{B^2}{\mu_0 L}$
 $\mathbf{j} \times \mathbf{B} \sim \sigma_e u B^2$
- la force de frottement (ou visqueuse) : $\rho_l (\nu \nabla^2 \mathbf{u}) \sim \rho_l \frac{\nu u}{L^2}$
- la longueur de pénétration du champ magnétique (ou peau magnétique) est obtenu par la résolution de l'équation (2.29) pour une composante :

$$\frac{\partial B_z}{\partial t} = \frac{1}{\mu_0 \sigma_e} \nabla^2 B_z$$

ce qui conduit à l'expression du champ magnétique pour un domaine semi-infini :

$$B_z = B_{0,z} \exp(\sqrt{i\omega\mu_0\sigma_e}(-\delta))$$

où $i^2 = -1$. On peut alors montrer que la peau magnétique a une épaisseur δ donnée par :

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu_0 \sigma_e \omega}} \quad (2.39)$$

2.3.2. Procédés de brassage électromagnétique

Le mécanisme du brassage électromagnétique (ElectroMagnetic Stirring, EMS) est basé sur la production d'un champ de force de Lorentz dans le matériau, provoquant l'apparition d'une convection forcée dans la partie liquide et pâteuse. En effet, si on considère un échantillon métallique entouré d'une bobine d'induction, la circulation d'un courant, \mathbf{j} , dans les spires d'induction, crée un champ magnétique, \mathbf{B} (fig. 2.7). Ce champ magnétique pénètre dans l'échantillon et génère un courant induit, \mathbf{j}_{ind} , dont le sens est opposé à \mathbf{j} . L'interaction entre le courant induit

et le champ magnétique crée un champ de force, \mathbf{F} , qui s'applique uniquement dans la peau magnétique, δ , de la partie liquide du métal. L'expression de la force de Lorentz induite est :

$$\mathbf{F} = \mathbf{j}_{ind} \times \mathbf{B} \quad (2.40)$$

avec \mathbf{F} la force de Lorentz, \mathbf{j}_{ind} la densité de courant induite dans le matériau et \mathbf{B} le champ magnétique appliqué. Le mouvement du liquide est alors créé par l'inhomogénéité de la force de Lorentz. Cette inhomogénéité peut être causée par des variations de la direction (cas du champ pulsant, fig. 2.8) ou de l'intensité (cas du champ glissant, fig. 2.10).

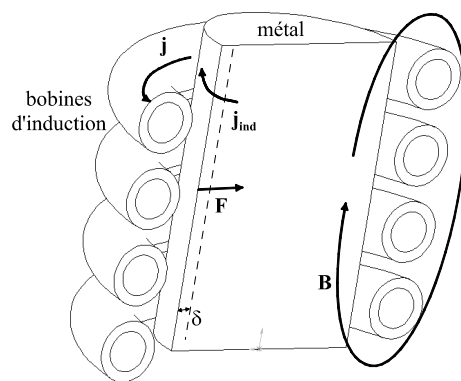


Figure 2.7 : Représentation d'une coupe longitudinale d'un système de chauffage par induction illustrant le principe du brassage électromagnétique.

Champs pulsants

L'inducteur est parcouru par un courant monophasé qui crée donc un champ magnétique alternatif fixe :

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{B}_0(\mathbf{r}) \cos(\omega t + \varphi)$$

On appelle aussi ce type de champ un "champ pulsant". Dans le cas d'un brassage proche de la partie supérieure d'un lingot coulé (en continu ou pas), cette force s'applique surtout dans les coins de la poche liquide (voir figure 2.8), créant ainsi une accélération du liquide dans cette région. Dans le cas du brassage électromagnétique en volume du lingot (absence de surface libre, ce qui correspond à la situation rencontrée pour la coulée continue des alliages cuivreux en fils), la divergence de la force de Lorentz est renforcée par l'utilisation d'une seule spire qui crée un champ dont les lignes de champ sont toroïdales (figure 2.8). La force induite a tendance à créer alors deux vortex de convection, de sens opposé, pour autant que la région en question soit toujours liquide. On notera l'importance du positionnement de la spire d'induction par rapport à

celle du liquidus de l'alliage. Cette dernière étant d'ailleurs influencée par le chauffage, inévitablement associé à l'induction.

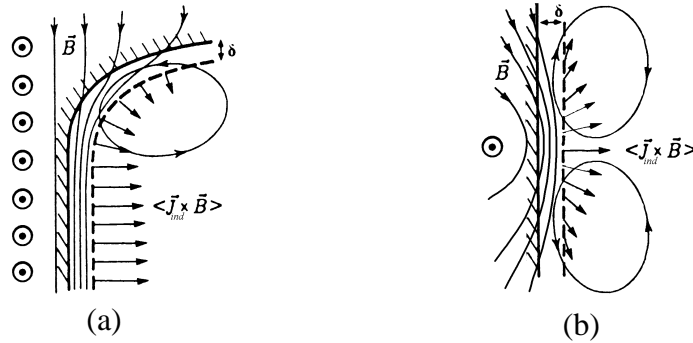


Figure 2.8 : Orientation et variation de la force de Lorentz dans le cas d'un champ pulsant proche d'une surface libre de liquide (a) et en volume (b) (d'après [38]).

Les fours à induction à proprement dits et certaines installations de coulée continue ou de coulée statique, utilisent ce type de champ (fig. 2.9). Ce type d'installation ayant été adopté par le partenaire industriel Swissmetal Boillat, nous avons donc utilisé le même système d'induction monophasée dans notre four Bridgman. Remarquons que le sens de convection dans le liquide est très dépendant de la fréquence utilisée [42].

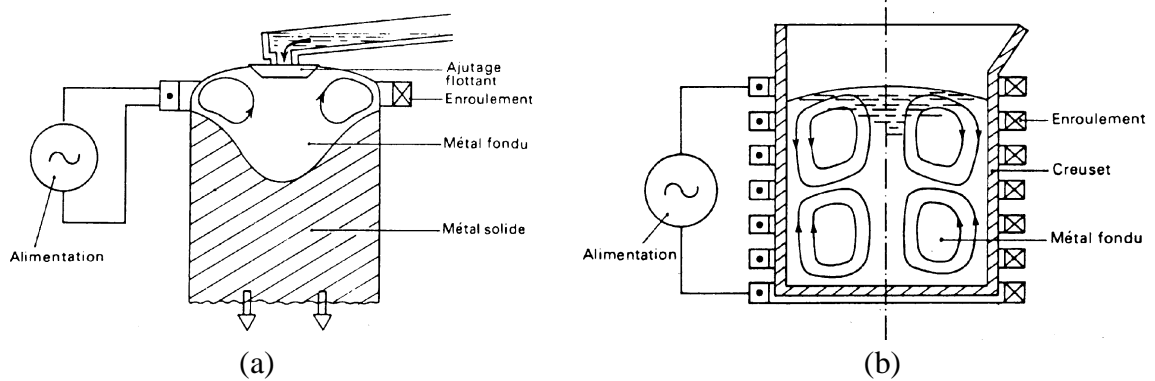


Figure 2.9 : Procédés industriels de brassage électromagnétique par induction monophasée, utilisés en coulée continue (a) et en creuset (b) [38].

Champs glissants

L'inducteur est parcouru dans ce cas, par un courant triphasé, qui crée un champ magnétique mobile :

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{B}_0(\mathbf{r}) \cos(\omega t + \varphi(\mathbf{r}))$$

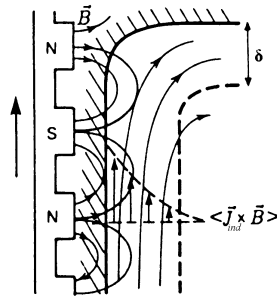


Figure 2.10 : Orientation et variation de la force de Lorentz dans le cas d'un champ glissant [38].

De par la configuration des bobines d'induction (fig. 2.10), la direction de la force de Lorentz appliquée à une composante est parallèle à la paroi. Les mouvements de convection ainsi créés suivent le sens de déplacement des inducteurs, le long des parois. Remarquons que ce champ mobile pourra être glissant ou tournant en fonction de la configuration des inducteurs qui auront été choisis (fig. 2.11). Cette technique est utilisée principalement, lors de la solidification de l'acier [43], mais aussi de l'aluminium [44] et du cuivre [45].

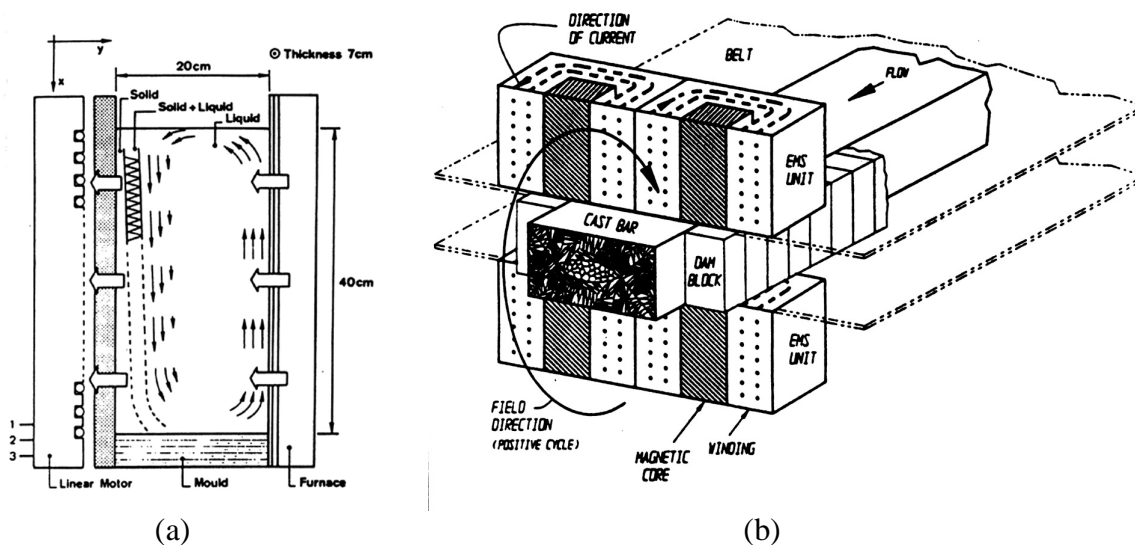


Figure 2.11 : Brassage électromagnétique appliqué à la coulée d'un alliage d'aluminium par champ glissant (a) [44] et à la coulée continue d'un alliage cuivreux par champ tournant (b) [45].

2.3.3. Etudes sur l'effet du brassage électromagnétique en métallurgie

Dans la littérature, il faut distinguer deux types d'études concernant l'effet de l'EMS sur les métaux liquides. En effet, un nombre conséquent de publications ont été réalisées sur l'étude de la convection des métaux liquides mais nettement moins sur l'influence de cette convection for-

cée sur la croissance colonnaire. Dans cette partie nous résumerons rapidement les travaux qui se rapportent au premier type d’études, pour se concentrer plus spécifiquement sur le second.

Ajoutés aux publications relativement générales concernant le brassage électromagnétique des liquides métalliques [46, 47], des travaux expérimentaux et numériques ont été menés dans le but d’étudier les effets du champ magnétique sur la convection induite dans le liquide. On peut citer en exemple les études de brassage électromagnétique en creuset [42, 48, 49], les études sur les convections turbulentes [49-51], ainsi que certaines approches numériques utilisées dans le but non seulement d’estimer les vitesses du fluide [52], mais aussi de caractériser d’autres phénomènes comme les échanges de chaleur [53].

L’effet de la convection ainsi créée par le champ magnétique sur la croissance colonnaire, n’est pas un phénomène complètement caractérisé. En effet, beaucoup de paramètres sont à prendre en compte : la fréquence et l’intensité du champ magnétique qui crée le brassage, les propriétés physiques du métal liquide et les conditions de croissance elles-mêmes. Il apparaît que l’application de la MHD dans la croissance d’alliages métalliques comporte deux domaines : la suppression des mouvements de convection naturels et la création de convection forcée vigoureuse (domaine qui comprend l’affinage de grains) [39].

Solidification sous champ magnétique en courant continu

Dans le premier cas la force de Lorentz induite par l’action du champ magnétique sur le liquide conducteur est utilisée pour freiner, voir supprimer, la convection naturelle qui peut apparaître lors de la solidification d’alliages. Lehmann et Moreau [54] appliquent un champ magnétique uniforme dans le but d’éviter la ségrégation d’éléments d’alliages de deux systèmes Cu-Ag et Al-Cu. Un autre exemple d’effet sur la macroségrégation est étudié par Tewari [55] dans le cas d’alliages Pb-Sn, pour lesquels la formation de "freckles" peut être supprimée en limitant la convection naturelle. Les applications concernant la solidification de type Czochralski (croissance de monocristaux) sont également nombreuses, quelques exemples sont donnés dans ces références : [56, 57]. Ces études montrent l’importance de l’orientation du champ par rapport à la direction de croissance pour que l’effet de freinage soit effectif. Notons que dans ces cas l’intensité du champ est de l’ordre du Tesla et que le champ est créé par un courant continu.

Solidification sous champ magnétique en courant alternatif

La convection forcée du liquide proche de la zone pâteuse a un effet important sur les propriétés de cette zone, changeant énormément les conditions de solidification. Un certain nombre d’études théoriques sur l’effet de la convection forcée ou naturelle sur la solidification dendritique, ont montré que la distance de diffusion du soluté, δ_c , en avant de la pointe de la dendrite, est fortement perturbée. Les résultats montrent que plus la convection est importante plus δ_c diminue ($\delta_c \sim Re^{-1/2}$ [58]). En effet, la convection tend à homogénéiser aussi bien la température que la concentration à la pointe de la dendrite [59], donc à diminuer le rejet de soluté. La vitesse de la pointe de la dendrite s’accroît donc avec la vitesse du fluide [58, 60]. En plus d’influencer sur la direction de croissance des dendrites [61, 62], ces homogénéisations solutales et thermiques autour des dendrites ont l’avantage, dans certains cas, de limiter la macroségrégation, d’éviter la formation de porosité et d’affiner la structure.

Lorsqu'on parle de limiter la macroségrégation, ce n'est pas tout à fait vrai car ce phénomène très complexe ne dépend pas que de la convection. En effet, en fonction des conditions expérimentales de coulée (coulée continue, coulée statique, affinage ou pas...etc), la macroségrégation peut avoir lieu ou pas :

- Lors de la coulée continue de l'acier, une ségrégation est obtenue en fin de solidification, c'est à dire lorsque la région liquide n'est plus en face du brasseur électromagnétique (donc qui n'est plus brassée) [63].
- Dans le cas d'une coulée statique, il faut prendre en compte que la solidification est confinée dans un creuset. Donc, indépendamment du brassage électromagnétique et au cours de la solidification, le liquide s'enrichit en élément de soluté. De plus, la convection proche de l'interface solide-liquide pénètre dans la zone pâteuse et redistribue le liquide déjà enrichi (le liquide est plus riche pour des fractions de solide élevées). Il est donc évident que plus la vitesse de convection augmente, plus le brassage va pénétrer la zone pâteuse, plus la redistribution du liquide enrichi sera importante. Au final, la macroségrégation est accrue [64].
- Contrairement aux deux cas précédents, si la coulée est continue et que les vitesses de tirage employées sont moins importantes que dans le cas de la coulée continue de l'acier, l'interface solide-liquide reste proche de l'inducteur. On aura alors deux différentes situations : si l'affinage de la structure a lieu, la solidification équiaxe sous convection ne présente plus de régions macroségrégées; s'il n'y a pas d'affinage, la ségrégation est localisée au centre de l'échantillon.

Concernant les défauts et plus spécifiquement la porosité, ils sont limités simplement par l'homogénéisation mécanique due au brassage du liquide. Cette diminution, voir élimination, de la porosité a été observée sur plusieurs alliages, aluminiums ([44], brassage mécanique [65]), aciers [66] et cuivreux [45].

Enfin, l'affinage de la structure est un phénomène complexe que la plupart des études attribuent à la fragmentation des bras de dendrites qui, créant de nouveaux sites de germination, entraîne une croissance équiaxe. Ce phénomène est économiquement crucial pour l'industrie, car il est un moyen d'homogénéiser un produit sans utiliser de substances inoculantes, ce qui dans le cas des alliages de cuivre est impossible, en général. Cet affinage permet donc d'augmenter les propriétés mécaniques mais aussi de réduire l'anisotropie, la microsegrégation et la tendance à la fissuration à chaud.

Affinage de la structure de coulée

Les effets du brassage électromagnétique sur la solidification des aciers, et plus précisément en coulée continue, ont été largement étudiés [43]. Cependant la technique d'EMS dans le cas de l'acier est très différente de celui de l'aluminium ou du cuivre. En effet, l'étendue du puit liquide pendant la solidification est de plusieurs mètres, le brassage n'a donc lieu que le long d'une petite partie du front de solidification. Au cours de la coulée continue d'alliages d'alumi-

niun ou cuivreux, le puit liquide est de l’ordre de dizaines de centimètres, les mouvements de convection sont donc appliqués le long de l’ensemble de l’interface solide-liquide. Nous focaliserons donc notre étude uniquement sur ce type de coulée.

Dans le but d’appliquer cette technique aux alliages d’aluminium, Vivés a mis au point un système de brassage électromagnétique pendant la coulée continue, le procédé CREM (Casting, Refining, ElectroMagnetic) [7, 67]. Dans ce cas, le brassage est créé par un champ pulsant. Les principaux résultats de cette étude expérimentale du procédé (mesures de champ et de vitesses du fluide) et de son application (effet sur la microstructure d’alliages d’aluminium), sont éloquentes : plus la puissance d’induction est élevée, plus les particules équiaxes sont fines (voir fig. 2.12). C’est principalement ce type de corrélation entre la puissance d’induction et l’efficacité de l’affinage que l’on constate pour les alliages d’aluminium [68-70]. Ce procédé d’EMS appliqué aux alliages d’aluminium a d’ailleurs permis d’améliorer les procédés de fabrication des alliages thixotropes^(a). Au lieu d’un brassage mécanique difficile à mettre en oeuvre à haute température (procédé "Rheocasting"), le procédé EMS a été adapté pour obtenir un brassage vigoureux et obtenir des grains équiaxes fins [71, 73].

De son côté, le brassage électromagnétique des alliages cuivreux a été beaucoup moins étudié, Meseha [45] a observé une diminution de la porosité et un affinage de grains lors de la coulée continue de barreaux de cuivre sous EMS.

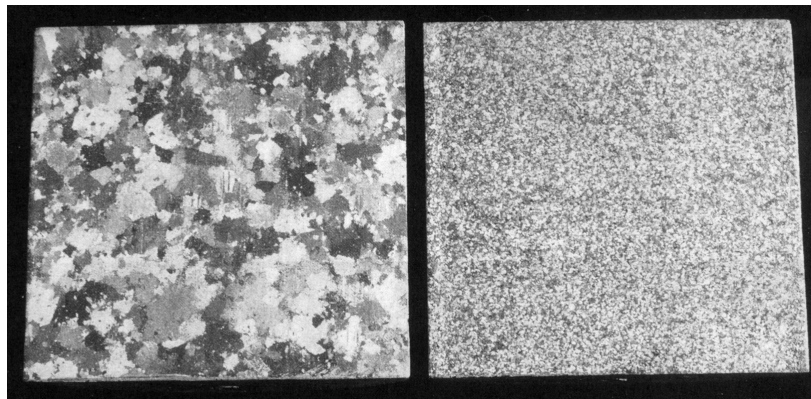


Figure 2.12 : Macrostructures d’alliage d’aluminium 1050 (coupe transverse du barreau de 70 mm de largeur) solidifié par coulée continue classique (gauche) et avec brassage électromagnétique (droite) [73].

2.3.4. Le processus d’affinage de grains par fragmentation de bras de dendrites

En l’absence de particules inoculantes dans le liquide, la formation de grains équiaxes est généralement attribuée à deux types de phénomènes : les conditions de coulée (gradient thermique à l’interface, vitesse de solidification, concentration en éléments d’alliage) ou la fragmentation des bras de dendrites. Ce dernier permet d’expliquer pourquoi il est possible d’obtenir une crois-

(a). Alliages à grains fins capables d’être reformés sous pression à l’état semi-solide, c’est à dire à une température inférieure à la température du liquidus [71, 72].

sance équiaxe dans un cas où tous les modèles prédisent une croissance colonnaire. Phénomène très complexe, il n'a été que très peu abordé dans la littérature. Seuls quelques auteurs ont décrit les mécanismes de fragmentation de dendrites pendant la coulée.

Étapes

Hellawell définit 5 étapes dans la formation de grains équiaxes par fragmentation des bras de dendrites [9] (fig. 2.13):

(1) : **la fragmentation** des bras de dendrites par refusion locale. La fragmentation n'est pas un phénomène bien connu, seuls quelques déductions issues d'observations sur la solidification d'alliages organiques ont été faites [8, 74]. Comme Jackson [75], Sato et Paradies attribuent cette fragmentation à la conséquence d'une refusion locale des sections les plus fines des bras de dendrites (effet de "cou", fig. 2.14). De son côté, Liu est arrivé à la conclusion que la fragmentation est principalement générée par la dissolution des bras de dendrites, elle-même induite par la décélération de la vitesse de refroidissement (fig. 2.15) [76]. En effet, il minimise le phénomène de refusion thermique des bras en pensant qu'il est possible mais qu'il n'a pas été observé dans leur cas. Il préfère parler de dissolution causée par une variation solutale dans la zone pâteuse. Rejoignant ce concept, la fragmentation a également été étudiée lors de la formation de "Freckles" au cours de la solidification. Gu et Beckermann [77] comme Hellawell [78], attribuent la formation des fragments à la dissolution solutale des dendrites, dans ce cas précis de création de canaux ségrégués. Remarquons que concernant l'effet du mouvement du liquide sur le réseau dendritique, Pilling a définitivement conclu que les déformations mécaniques induites par convection du liquide interdendritique ne pouvaient pas être la cause du détachement des bras de dendrites [79].

(2) : **le transport** des fragments de la zone pâteuse vers le liquide en avant du front de croissance colonnaire. Ce phénomène de transport requiert une convection naturelle ou forcée dans la région concernée. Cette étape n'a pratiquement pas été étudiée. Liu suppose que la convection interdendritique est responsable du transport des fragments de la zone pâteuse vers le liquide [80]. Dans le cas du brassage électromagnétique, la convection dans les régions interdendritiques est induite par la convection du liquide, produite en volume. Dans le cas de la formation des "Freckles", le transport des fragments situés au fond du canal est assuré par une convection thermo-solutale, ce transport a d'ailleurs été modélisé par Gu [77].

(3) : **la survie** des fragments. Les fragments sont amenés vers des régions plus chaudes, leur survie va donc dépendre du parcours qu'ils vont effectuer dans le liquide chaud (soit ils s'éloignent, soit ils se rapprochent du front de solidification), du temps qu'ils vont mettre pour fondre totalement et de l'étendue de la zone en surfusion en avant de l'interface. Seul Han a estimé des vitesses de refusion des fragments dans un cas simple de particules sphériques dans un liquide, donc sans convection [81]. De son côté, Gu a pris en compte l'influence du parcours du fragment pour étudier sa survie dans une modélisation numérique, mais seulement dans le cas d'une refusion solutale et d'une convection naturelle [77].

(4) : **la croissance et la sédimentation.** Dans le cas de la survie d’un fragment dendritique, sa croissance peut avoir lieu. Par piégeage (le front de solidification peut piéger un fragment en avançant) ou par sédimentation, la structure équiaxe se met en place.

(5) : **la formation** de la structure équiaxe. La formation de grains équiaxes en avant du front de solidification bloque la croissance des dendrites colonnaires. La structure devient alors équiaxe. Etant un des rares auteurs à étudier ce phénomène lorsqu’il est lié à la fragmentation, Jang a estimé des vitesses de sédimentations dans le cas d’un alliage organique, en utilisant un écoulement de type Stokes [82], ainsi qu’un critère analytique de blocage de croissance d’un front de solidification colonnaire. Cependant pour des raisons de simplification, nous considérons que du moment que les fragments ont survécu, la structure finale est équiaxe.

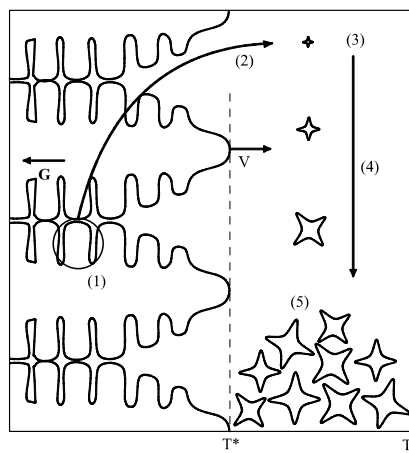


Figure 2.13 : Etapes de la création de grains équiaxe par fragmentation des bras de dendrites : (1) refusion locale des bras de dendrite, (2) transport des fragments, (3) survie des fragments, (4) croissance et sédimentation et (5) formation de la structure équiaxe.

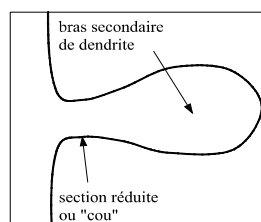


Figure 2.14 : Illustration d’un bras secondaire de dendrite. Le phénomène de refusion est localisé sur la section la plus fine de ce bras secondaire, appelée "cou".

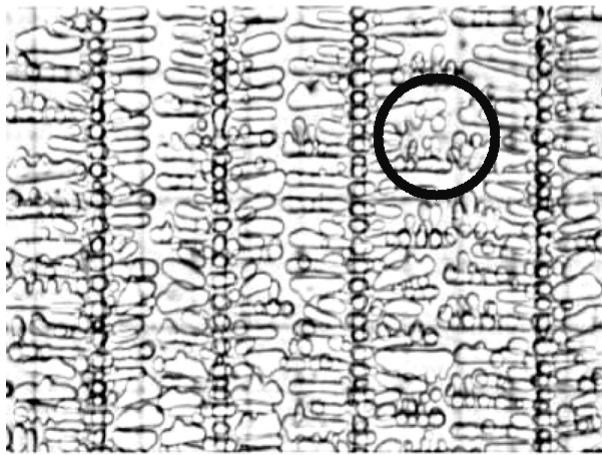
(a) $t = 4$ min, 4.2% detachment(b) $t = 16$ min, 67.4% detachment

Figure 2.15 : Observation de la fragmentation des bras de dendrite, pour l'alliage organique SCN-5.6% H_2O , lors de la décélération de la vitesse d'avance du front de croissance. Au cours du temps, la proportion de fragments augmente donc. La figure (a) montre des bras de dendrite encore attachés aux troncs primaires. Dans la figure (b), la refusion locale de ces bras a créé de nombreux fragments (le cercle noir localise un exemple de fragments refondus) [76].

Facteurs d'influence

Les conditions de fragmentation restent assez floues. Cependant l'ensemble des études qui se rapportent à la fragmentation des bras de dendrites s'accordent à dire qu'il existe des paramètres prépondérants :

- la vitesse de convection. L'intensité de la convection (donc la puissance de l'induction électromagnétique) diminue les gradients thermique et chimique proche de l'interface. Il semble raisonnable de penser que cette diminution de gradient est responsable de la refusion des bras de dendrites. Dans ces conditions, plus la convection est vigoureuse plus l'affinage sera effectif [7, 43, 68, 70].
- le mode d'écoulement. La présence de convection turbulente ou laminaire semble

influencer l’affinage. Kishida a montré, par des mesures de température lors d’une convection turbulente, que les instabilités de température induites par ce mode de convection peuvent favoriser une refonte des bras de dendrites, par déstabilisations du front de solidification [83].

- la concentration en élément d’alliage. Une augmentation de la concentration initiale en élément d’alliage augmente l’étendue de la zone en surfusion en avant du front de solidification. Ce phénomène augmente donc la probabilité de la survie des fragments mais diminue aussi le rayon des dendrites (donc du cou de chaque bras secondaire de dendrite), facilitant la refusion des bras secondaires [74].
- la décélération de la vitesse de refroidissement. La décélération de la vitesse de croissance induit une augmentation ponctuelle de la température [75] et de la concentration [76] dans la zone interdendritique. Ce phénomène induit alors la refusion thermique et solutale des bras de dendrite.

MODÉLISATION



3.1. ECHELLE MICROSTRUCTURALE

Dans cette partie, les modèles qui ont été présentés dans le chapitre précédent, seront adaptés afin de caractériser les microstructures rencontrées dans le cas d'alliages multicomposés. Les alliages multicomposés comportent au minimum deux éléments d'alliages à des concentrations variables. Or, les équations vues précédemment ne s'appliquent qu'à des alliages binaires, pour lesquels les relations entre température et concentration sont univoques. Il s'agit donc d'adapter ces théories à des équations plus complexes où température et concentrations ne sont plus aussi simplement reliées entre elles. Nous nous référerons, dans cette partie, à l'article de Rappaz et Boettinger [21].

3.1.1. Cinétique de croissance

Le modèle d'Ivantsov d'une pointe parabolique peut être appliqué à chaque élément d'alliage i :

$$\Omega_i = Iv(Pe_i) \quad (3.1)$$

où Ω_i est la sursaturation et Pe_i le nombre de Péclet pour l'élément, i , considéré :

$$\Omega_i = \frac{C_{l,i}^* - C_{0,i}}{C_{l,i}^*(1 - k_i)}$$

$$Pe_i = \frac{RV}{2D_{l,i}}$$

avec $C_{l,i}^*$ la concentration du liquide à l'interface et $C_{0,i}$ la concentration initiale en élément i , k_i le coefficient de partage et $D_{l,i}$ le coefficient de diffusion correspondant dans le liquide. En superposant les champs de diffusion de chacun des éléments de soluté, le critère de stabilité marginale, qui permet de déterminer la morphologie de la pointe de la dendrite, devient :

$$R = 2\pi \sqrt{\frac{\Gamma}{\sum_{i=1}^n m_i G_{c,i} - G}} \quad (3.2)$$

où n est le nombre total d'éléments de soluté, m_i la pente de liquidus du diagramme de phase selon l'axe de la concentration (i) et $G_{c,i}$ le gradient chimique du soluté i à l'interface ($D_{l,i}G_{c,i} = -VC_{l,i}^*(1 - k_i)$). Le modèle KGT [20], ainsi adapté aux systèmes complexes [21], a été choisi pour caractériser l'évolution du rayon de la pointe et sa surfusion pour la suite de l'étude.

3.1.2. Espacement secondaire des bras de dendrite

Reprenant la relation générale qui permet de déterminer l'espacement secondaire des bras de dendrite pour les alliages binaires,

$$\lambda_2 = 5.5(Mt_f)^{1/3} \quad (3.3)$$

et,

$$t_f = \frac{\Delta T'}{\left| \frac{dT}{dt} \right|} = \frac{\Delta T'}{|GV|} \quad (3.4)$$

Rappaz et Boettinger ont adapté la "vitesse" de maturation M dans le cas d'alliages multicomposés [21] :

$$M = \frac{-\Gamma}{\sum_{i=1}^n \frac{m_i(1 - k_i)(C_{l,i} - C_{0,i})}{D_{l,i}}} \ln \left[\frac{\sum_{i=1}^n \frac{m_i(1 - k_i)C_{l,i}}{D_{l,i}}}{\sum_{i=1}^n \frac{m_i(1 - k_i)C_{0,i}}{D_{l,i}}} \right] \quad (3.5)$$

où t_f est le temps de solidification et $C_{l,i}$ correspond à la concentration finale du liquide en soluté i . $\Delta T'$ est considéré, dans notre cas, comme la différence de température entre la pointe de la dendrite et la température du solidus. Pour des raisons de simplification, les coefficients de diffusion dans le liquide sont choisis égaux et constants. De même, les pentes des liquidus et les coefficients de partage, qui sont fonctions de toutes les concentrations, ne sont pas facilement accessibles pour les alliages considérés (il manque les éléments Ni, Zn et P dans les bases de données de type Thermocalc des alliages cuivreux). Nous les avons donc déduits des alliages binaire Cu-(i). Remarquons que le coefficient de Gibbs-Thomson est toujours déterminé comme le rapport entre la tension de surface, σ , et l'entropie de fusion volumique du système considéré, ΔS_f :

$$\Gamma = \frac{\sigma}{\Delta S_f} \quad (3.6)$$

3.1.3. Transition colonnaire-équiaxe selon le modèle de Hunt

Les phénomènes responsables de l'affinage de grain sous brassage électromagnétique étant complexes, il paraît judicieux d'utiliser un modèle analytique simple pour rendre compte de la

transition colonnaire-équiaxe lorsqu'il n'y a pas de mouvement de liquide. En effet, comme il a été vu dans le chapitre précédent, l'affinage de grain ne peut pas être considéré comme une CET selon les modèles courants, à cause de l'effet de la convection forcée. Le modèle de prédiction de la CET développé par Hunt [6], ne constituera donc qu'un moyen de comparaison avec le critère d'affinage de grains qui sera défini au cours de cette étude.

Dans le cas d'alliages multicomposés, les relations (2.16) et (2.17) permettront de prédire le type de croissance. Remarquons que, dans ce cas, la surfusion de croissance du front colonnaire, ΔT_{col} , est évaluée à l'aide du modèle KGT appliqué aux alliages industriels [21] :

$$\Delta T_{col} = \sum_{i=1}^n m_i (C_{0,i} - C_{l,i}^*) \quad (3.7)$$

avec,

$$C_{l,i}^* = \frac{C_{0,i}}{1 - (1 - k_i)Iv(Pe_i)} \quad (3.8)$$

3.1.4. Fraction de solide

Comme vu précédemment, la fraction de solide locale est une notion essentielle caractérisant la zone pâteuse. Cette fraction de solide évolue en fonction de la position dans la zone pâteuse, donc de la température du métal, comme le montre schématiquement la figure 3.1.

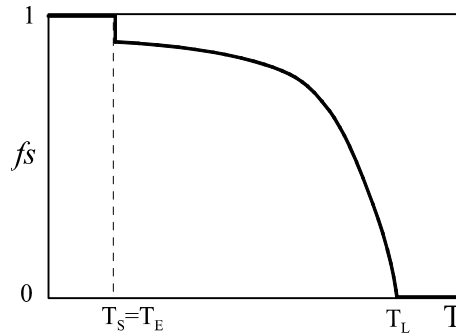


Figure 3.1 : Evolution de la fraction de solide en fonction de la température pour un alliage binaire. La phase primaire se solidifie jusqu'à ce que la température atteigne la température eutectique, T_E .

Les méthodes analytiques de prédiction de l'évolution de la fraction de solide avec la température sont dérivées des modèles de microségrégation. Comme pour la plupart des alliages métalliques, les coefficients de diffusion dans le solide sont très inférieurs à ceux dans le liquide, pour tous les éléments d'alliages entrant dans la composition des alliages C97 et BZ4. Pour exemple, la diffusion du plomb dans une matrice de cuivre est de $6.6 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ dans le solide (à 900°C) et de $1.3 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ dans le liquide (à 1100°C), respectivement [84]. Dans ce cas, le nombre de Fourier modifié par Clyne et Kurz, α' , est de l'ordre de 10^{-3} . On peut donc raisonnablement considérer que les phénomènes de rétro-diffusion peuvent être négligés dans notre

étude. Par conséquent, le modèle de Scheil s'avère être une bonne méthode de prédiction de $f_s(T)$. L'expression de l'évolution de la fraction de solide, dans le cas des alliages industriels C97 et BZ4, s'écrit (adaptation de la relation (2.21) dans le cas d'une surface de liquidus plane) :

$$T = T_m + \sum_{i=1}^n \frac{m_i C_{0,i}}{(1-f_s)^{1-k_i}} \quad (3.9)$$

3.1.5. Perméabilité de la zone pâteuse

Dans le cas d'une croissance dendritique, on assimile souvent la zone pâteuse à un milieu poreux. Pour rendre compte de la compacité des dendrites dans la zone pâteuse, la notion de perméabilité a été introduite. Le modèle de Kozeny, complété par Carman [85, 86], définit la perméabilité comme une fonction de la surface spécifique du solide en contact avec le liquide, S_V :

$$K = \frac{f_l^3}{5S_V^2} \quad (3.10)$$

avec $S_V = S_0(1-f_l)$, la perméabilité s'écrit donc comme :

$$K = \frac{1}{5S_0^2} \frac{f_l^3}{(1-f_l)^2} \quad (3.11)$$

Dans un but de simplification, nous estimerons la surface spécifique, S_0 , comme la surface de sphères uniformes dont le diamètre est égal à l'espacement secondaire de dendrite par unité de volume de solide, lorsque $f_l = 0$ [87] :

$$S_0 = \frac{4\pi\left(\frac{\lambda_2}{2}\right)^2}{\frac{4\pi\left(\frac{\lambda_2}{2}\right)^3}{3}} = \frac{6}{\lambda_2} \quad (3.12)$$

La relation de Carman-Kozeny, définie par la relation (3.11), devient donc :

$$K = \frac{\lambda_2^2}{180} \frac{f_l^3}{(1-f_l)^2} \quad (3.13)$$

Rappelons que $f_l = 1 - f_s$.

La figure 3.2 illustre l'évolution de la perméabilité en fonction de la fraction de solide, pour différentes valeurs d'espacement secondaire de bras de dendrite.

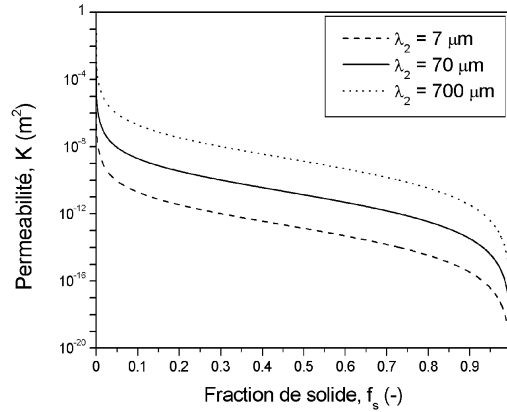


Figure 3.2 : Perméabilité de la zone pâteuse pour trois valeurs de l'espacement secondaire de bras de dendrite. On notera que la perméabilité diminue si la fraction de solide et la compacité des bras de dendrite augmentent.

3.2. ECHELLE DES PROCÉDÉS

La modélisation du comportement des alliages industriels à l'échelle du procédé (macroscopique), a été réalisé avec le logiciel commercial *calcosoft*® [88]. Certains des modèles physiques utilisés dans ce logiciel, se rapportant à notre problème, seront présentés dans cette partie : les transformations de phase, la radiation, l'induction électromagnétique et l'écoulement de liquide.

3.2.1. Transformations de phase

A l'échelle macroscopique et sans tenir compte des phénomènes de radiation, la solidification est essentiellement gouvernée par l'équation de la chaleur moyennée sur les phases [87] :

$$\text{div}(-\mathbf{j}_T) = \frac{\partial H}{\partial t} + \rho C_p \cdot \mathbf{u} \cdot \nabla T \quad (3.14)$$

où \mathbf{j}_T est le flux de chaleur ($\mathbf{j}_T = -\kappa \mathbf{grad}(T)$, κ étant la conductivité thermique moyenne et T la température), H l'enthalpie volumique, ρ la masse spécifique, C_p la chaleur spécifique et \mathbf{u} la vitesse du fluide. L'enthalpie volumique du système est en fait une enthalpie moyenne définie comme suit :

$$H = \int_0^T \rho C_p \cdot dT' + L_f \cdot (1 - f_s) \quad (3.15)$$

donc,

$$\frac{\partial H}{\partial t} = \rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} - L_f \frac{\partial f_s}{\partial t} \quad (3.16)$$

avec L_f la chaleur latente de fusion volumique. A noter que cette équation considère que le solide reste fixe et que seule la chaleur spécifique du liquide est advectée avec $\mathbf{u} = f_l \mathbf{u}_l$.

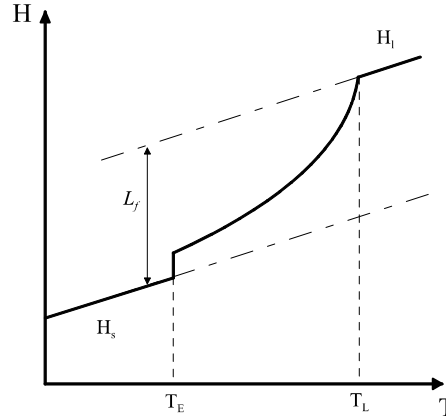


Figure 3.3 : Evolution de l'enthalpie volumique moyenne avec la température, au cours d'un changement de phase, pour un alliage binaire.

Dans le cas simple où la vitesse du fluide n'est pas prise en compte, l'évolution de l'enthalpie moyenne volumique permet de caractériser la transformation de phase. La figure 3.3 illustre cette évolution pour un alliage binaire. Cependant la réalité est beaucoup moins simple. En effet, il est important que considérer les effets inhérents aux phénomènes de radiation (particulièrement importante à nos températures de coulée) et de convection dans le liquide.

3.2.2. Rayonnement

Le rayonnement est un phénomène naturel qui consiste en un rayonnement électromagnétique de toute substance, induit par l'agitation atomique ou moléculaire. Le flux d'énergie émis par la surface plane d'un corps dans le vide, en fonction de l'agitation thermique et de l'émissivité de ce corps, est donné par la relation de Stefan-Boltzmann :

$$q = \varepsilon \sigma_B T^4 \quad (3.17)$$

ε est l'émissivité du corps considéré, σ_B la constante de Stefan-Boltzmann ($\sigma_B = 5.6696 \cdot 10^{-8} \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-4}$) et T la température absolue. Remarquons qu'il existe généralement deux types de corps qui sont définis par leur émissivité :

- le corps noir : $\varepsilon = 1$. Ce corps a la particularité d'absorber la totalité des radiations et d'être un parfait émetteur.
- le corps gris : $\varepsilon < 1$. Ce corps n'émet et n'absorbe que partiellement l'énergie de la radiation. Dans ce cas, la surface est partiellement réfléchissante puisqu'elle n'absorbe qu'une

partie de l'énergie incidente et en réfléchit la différence.

Si on considère le cas de plusieurs surfaces réfléchissantes, le problème se complique car il faut prendre en compte les réflexions multiples entre les surfaces des corps considérés. Le rayonnement émis en un point d'une pièce peut donc être capté par des surfaces qui ne sont pas forcément directement exposées. Pour appréhender ce phénomène, il est nécessaire de considérer deux notions importantes : les facteurs de vue et la méthode de la radiation nette.

Les facteurs de vue caractérisent les positions et les orientations relatives des surfaces entre elles. Prenons le cas de deux surfaces maintenues à température fixe, représentées sur la figure 3.4. Le facteur d'angle correspondant à cette configuration est défini suivant la relation [89] :

$$F_{1-2} = \frac{1}{A_1} \int_{A_1} \int_{A_2} \frac{\cos \theta_1 \cos \theta_2}{\pi D^2} dA_1 dA_2 \quad (3.18)$$

avec A la surface, θ l'angle entre la direction reliant les deux surfaces infinitésimales dA_1 et dA_2 (surfaces distantes de D) et les normales à ces dernières (figure 3.4).

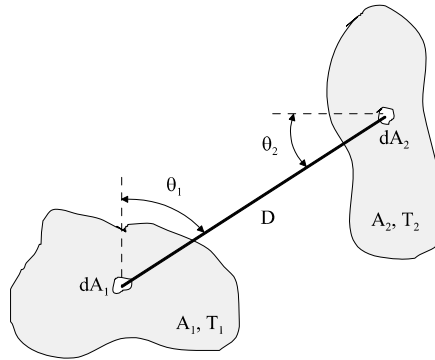


Figure 3.4 : illustration de la détermination des facteurs d'angle entre deux surfaces.

La méthode de la radiation nette est une méthode qui permet de déterminer, pour chaque surface, la quantité d'énergie incidente et réfléchie, sachant que l'énergie incidente peut provenir de réflexions d'autres surfaces [89]. On considère que le flux sortant de la face i , q_i^{out} , est composé de l'émission propre en cette face et de la partie réfléchie du rayonnement incident, q_i^{in} :

$$q_i^{out} = \epsilon_i \sigma_B T_i^4 + (1 - \epsilon_i) q_i^{in} \quad (3.19)$$

De son côté, le flux incident correspond à une réflexion provenant d'un nombre n d'autres faces j . On a donc :

$$q_i^{in} = \sum_{j \neq i}^n F_{i-j} q_j^{out} \quad (3.20)$$

Des relations (3.19) et (3.20), on peut donc déterminer la quantité d'énergie émise par la surface A_i (radiocité) :

$$A_i q_i^{out} = A_i \left[(1 - \epsilon_i) \sum_{j \neq i}^n F_{i-j} q_j^{out} + \epsilon_i \sigma_B T_i^4 \right] \quad (3.21)$$

Le flux de chaleur appliqué comme condition limite de chaque face sera donc :

$$\kappa \frac{\partial T}{\partial n} = q_i^{in} - q_i^{out} = \epsilon_i \left[\sum_{j \neq i}^n F_{i-j} q_j^{out} - \sigma_B T_i^4 \right] \quad (3.22)$$

3.2.3. L'induction électromagnétique

L'utilisation du phénomène d'induction électromagnétique au cours de la solidification, implique de prendre en compte deux effets importants : la création de forces de convection mais aussi le chauffage par effet joule.

Dans le cas d'une géométrie axisymétrique (type de géométrie que nous utiliserons lors de la modélisation), la résolution des équations de Maxwell (définies au §2.3.1), permettent de déterminer l'expression du champ magnétique et de la densité de courant [90]. Dans le référentiel associé au système de coordonnées cylindriques (\mathbf{e}_r , \mathbf{e}_θ , \mathbf{e}_z), le champ magnétique \mathbf{B} ne dépend que de r , z et t suivant la relation :

$$\mathbf{B}(r, z) = (B_r(r, z)\mathbf{e}_r + B_z(r, z)\mathbf{e}_z)\exp(i\omega t)$$

En fonction du potentiel scalaire $\phi(r, z)$, défini par la relation,

$$\mathbf{A}_m = \exp(i\omega t)\phi(r, z)\mathbf{e}_\theta$$

\mathbf{A}_m étant le vecteur potentiel magnétique, on obtient alors les composantes du champ magnétique suivantes ($\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}_m$) :

$$\begin{aligned} B_r &= -\frac{\partial \phi}{\partial z} \\ B_z &= \frac{1}{r} \frac{\partial(r\phi)}{\partial r} \end{aligned} \quad (3.23)$$

La densité de courant, présente dans n'importe quel conducteur, peut être calculée (pour plus de détails concernant ces développements, voir [90]) :

$$\mathbf{j} = \sigma_e \left(-i\omega \phi + \frac{U}{2\pi r} \right) \quad (3.24)$$

où U est la tension imposée aux bornes de l'inducteur torique (du type $U = U_0 e^{i\omega t}$).

Connaissant le champ magnétique et la densité de courant induite dans l'échantillon, le champ de force de Lorentz est alors déterminé par la relation (2.40) :

$$\mathbf{F} = \mathbf{j}_{ind} \times \mathbf{B}$$

De la même manière le terme de dissipation par effet joule s'exprime comme $|j_m|^2 / \sigma_e$, avec j_m la densité de courant moyenne égale à $j_m = j / \sqrt{2}$. Le terme de dissipation par effet joule est donc :

$$\frac{j^2}{2\sigma_e} = \frac{1}{2} \left| \left(-i\omega\phi + \frac{U}{2\pi r} \right) \right|^2 \quad (3.25)$$

3.2.4. Mouvements de convection

Pour rendre compte des mouvements de convection présents au sein du liquide, l'équation générale correspondant au bilan de quantité de mouvement (relation de Navier-Stokes (2.32)) est considérée. Cependant, dans un domaine biphasé, c'est-à-dire au cours de la solidification, un terme de friction, \mathbf{F}_r , qui tient compte du freinage du liquide par friction avec le solide, doit être ajouté à cette relation. N'oublions pas également que, dans ce cas biphasé, l'équation est moyennée, c'est à dire que la fraction de liquide doit être prise en compte. On obtient alors [87] :

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \frac{1}{f_l} (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} + \mathbf{F}_r = -\frac{f_l}{\rho} \nabla p + \nu \nabla^2 \mathbf{u} + \mathbf{F}_{ext} \quad (3.26)$$

Dans le cas de la solidification d'un alliage métallique, le terme de friction décrit l'interaction du liquide dans la zone pâteuse, donc fait intervenir la notion de perméabilité. De plus, sous convection induite par brassage électromagnétique, il a été montré précédemment que les forces extérieures correspondent non seulement à l'effet de la force de gravité mais aussi de la force de Lorentz (équation (2.33)). L'équation de Navier-Stokes pour un domaine biphasé sous convection forcée s'écrit donc ($\nu = \mu / \rho$):

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \frac{\rho}{f_l} (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} + f_l \frac{\mu}{K} \mathbf{u} = -f_l \nabla p + \mu \nabla^2 \mathbf{u} + f_l \rho_B \mathbf{g} + f_l (\mathbf{j}_{ind} \times \mathbf{B}) \quad (3.27)$$

où chacun des termes correspond respectivement à la variation temporelle locale de la quantité de mouvement, à son transport, à la friction exercée par le réseau dendritique, à la pression dynamique, à la diffusion de la quantité de mouvement, aux forces de gravité et de Lorentz. A l'aide de l'équation (3.27), on peut déterminer certaines tendances concernant le comportement du liquide :

- si tout le domaine est liquide, f_l tend vers 1 et la perméabilité K tend vers l'infini. Le terme de friction s'annule et la relation s'écrit donc comme une équation de Navier-Stokes standard.
- lorsque la fraction de liquide diminue (f_s augmente), le terme de friction devient prépondérant devant les autres contributions, où apparaît la vitesse. L'écoulement du liquide est alors régi par une loi de type Darcy [91].
- plus la puissance d'induction augmente, plus les mouvements de convection dans le

liquide vont augmenter.

Remarquons que la convection induite par la gravité est due à la variation de la densité dans le liquide. Concernant le terme de forces volumiques, on ne peut donc pas faire l'hypothèse de densités du solide et du liquide égales et constantes. Dans ce cas, l'approximation de Boussinesq peut être utilisée :

$$\rho_B = \rho_0 \left(1 - \beta_T(T - T_0) - \sum_{i=1}^n \beta_{C,i}(C_i - C_{0,i}) \right) \quad (3.28)$$

où β_T et β_C sont les coefficients d'expansion thermique et solutal, respectivement. ρ_0 est une densité de référence à T_0 et pour une concentration C_0 .

MÉTHODES EXPÉRIMENTALES



4.1. ECHANTILLONS

Les alliages étudiés dans ce travail correspondent à deux alliages à base de cuivre, dont la composition en pourcentage poids est respectivement de Cu-1%Ni-1%Pb-0.2%P pour l'alliage noté C97 et Cu-4%Zn-4%Sn-4%Pb pour celui noté BZ4. Ces derniers sont fournis par le partenaire industriel Swissmetal, sous forme de barreaux cylindriques (appelés «fils») de diamètres variés et bruts de coulée (sans traitement thermo-mécanique).

4.2. ANALYSE THERMIQUE APPLIQUÉE AUX MÉTAUX

Dans le but d'évaluer l'évolution de la fraction de solide en fonction de la température des alliages industriels, C97 et BZ4, une méthode de calcul a été appliquée à partir des résultats obtenus avec l'analyse thermique. Deux techniques d'analyse ont été utilisées, l'analyse thermique différentielle et l'analyse thermique à double creuset imbriqué.

La technique la plus utilisée parmi l'ensemble des techniques d'analyse thermique est très certainement l'Analyse Thermique Différentielle (ATD ou Differential Thermal Analysis, DTA). Cette technique est facile d'emploi, les résultats que l'on peut obtenir sont précis et certaines propriétés thermodynamiques du matériau étudié peuvent être déduites [92]. La DTA consiste en une mesure différentielle des propriétés thermiques durant le chauffage et le refroidissement d'un échantillon et d'une référence en fonction du temps ou de la température, qui permet de déterminer la (ou les) température(s) de transition de phase de l'échantillon [93]. Cependant, il a été montré que d'importantes erreurs peuvent être faites lors de l'interprétation des courbes de DTA [94-98]. Ces erreurs sont principalement dues aux limitations de la technique elle-même et plus spécifiquement dans le cas de l'étude d'alliages métalliques : résistance thermique du système, problèmes de surfusions pendant le refroidissement et méthode de détermination des températures de changement de phase [97].

Dans le but de limiter les inconvénients inhérents à la DTA, certaines solutions ont été développées :

- «interrupted-heating method», basée sur une procédure expérimentale d'interruption de la rampe de chauffage. Wu a développé une méthode permettant de déterminer avec précision la température du liquidus pour des alliages multicomposés [99],

- Boettinger a quant à lui mis au point une méthode de calibration complète permettant de contourner les difficultés dues à la résistance thermique du système [97],
- l'utilisation de thermocouples immergés dans le liquide avec creuset simple [14, 100] permet de s'affranchir des résistances thermiques des thermocouples placés sous les nacelles d'une installation usuelle de DTA.

Il n'en reste pas moins que la DTA utilise de très petits échantillons (quelques mm³) pour lesquels les surfusions peuvent, par conséquent, être élevées et peu représentatives d'échantillons plus massifs. Les problèmes de contamination ou d'évaporation sont aussi plus marqués de par le rapport surface/volume important. Afin de palier à ces inconvénients plusieurs auteurs ont développé des techniques utilisant des échantillons plus massifs (~1cm³). Parmi ces techniques, un système de double creuset [101, 102], c'est à dire une deuxième enveloppe entourant le creuset contenant l'échantillon, a été mis en oeuvre. Il permet également de mieux déterminer le flux thermique quittant l'échantillon.

S'inspirant de ce dispositif de double creuset, un système composé d'un creuset externe contenant le second creuset et son échantillon, nommé SPTA ou ATDC (Single Pan Thermal Analysis ou Analyse Thermique à Double Creuset imbriqué), a été mis au point [98]. Ce système est basé, comme la DTA, sur une mesure différentielle de température mais cette fois-ci entre l'échantillon et le creuset externe.

4.2.1. L'analyse thermique différentielle, ATD ou DTA

Présentation

L'analyse thermique différentielle, DTA, utilisée tout au long de ce travail, est un appareillage NETZSCH DSC PEGASUS (fig. 4.1). Ce système est composé de deux creusets généralement en alumine qui contiennent respectivement l'échantillon et le matériau de référence (creuset de référence que l'on choisit vide le plus souvent). Ces creusets sont placés dans l'enceinte d'un four contrôlé et sous environnement inerte, dans le but d'éviter toute réaction chimique (dans notre cas il s'agit d'argon). La différence de température entre l'échantillon et la référence est mesurée par des thermocouples de type S (Pt-10%Rh : Pt) qui sont en contact avec le fond de chaque creuset. Le volume typique des échantillons dans le cas de nos alliages cuivreux est environ de 2 mm³, ce qui correspond à des masses comprises entre 10 et 30 mg. Avec cet appareillage, l'analyse peut être menée sur une gamme de température comprise entre la température ambiante et 1500 °C. Les mesures de températures sont précises au dixième de degré et les rampes de chauffe/refroidissement disponibles sont comprises entre 0.1°C/min et 20°C/min.

Malgré la dénomination DSC (Differential Scanning Calorimetry), il ne s'agit pas dans le cas présent d'un calorimètre, mais bien d'une DTA. Les creusets contenant les échantillons sont chauffés/refroidis ensemble et non séparément. En effet, un appareillage DSC est constitué de deux creusets chauffés/refroidis indépendamment, l'énergie nécessaire à l'établissement d'une différence de température nulle entre l'échantillon et la référence étant mesurée en fonction du

temps ou de la température. Cette dénomination est utilisée abusivement avec la présente installation car il est possible de calculer les transferts de chaleur qui ont lieu au sein de la DTA.

L'appareillage a été calibré pour chaque vitesse de chauffe/refroidissement utilisée par analyse d'un ensemble de corps pur à 99.999% dont les températures de fusion couvrent toute la gamme de température du système : In, Sn, Bi, Zn, Al, Ag, Au et Ni.

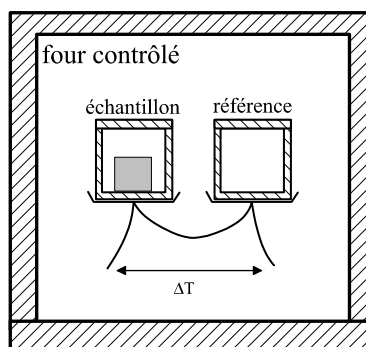


Figure 4.1 : Représentation schématique de l'appareillage d'analyse thermique DTA

Technique d'analyse

Lors d'une mesure DTA, la différence entre la température de l'échantillon, T_E , et celle de la référence, T_R , est mesurée en fonction du temps ou de la température pendant la chauffe et/ou le refroidissement du dispositif. La courbe typique obtenue qui correspond à l'évolution de cette différence de température $\Delta T(t) = T_E(t) - T_R(t)$, est représentée sur la figure 4.2. Lors du changement de phase (s'il a lieu), la chaleur latente est libérée ou absorbée par l'échantillon, créant une différence d'évolution de la température de l'échantillon par rapport à celle de la référence.

Remarquons sur cette figure que la température de l'échantillon mesurée, c'est à dire celle du thermocouple qui touche le fond externe du creuset contenant l'échantillon, est sensiblement différente de la température réelle de l'échantillon. Ceci est principalement dû à la résistance thermique de la paroi du creuset.

L'interprétation des courbes DTA est difficile et souvent source d'erreurs. Il a donc été convenu que les températures de transition de phase (liquidus et solidus) dans le cas d'une réaction exothermique (solidification) sont considérées respectivement comme :

- l'extrapolation de la température du début du pic (T_{onset} sur la figure 4.2) [103],
- la température correspondante au maximum du pic [104]. En effet, dans ce cas, il est impossible de connaître la position exacte de la fin de réaction sur le pic DTA, la fin du pic prenant en compte l'inertie du système pour revenir à un état stable.

Dans le cas d'une réaction endothermique (fusion), l'extrapolation de la température de début de pic correspond au solidus et le maximum du pic au liquidus. C'est d'ailleurs la raison pour laquelle une analyse DTA est toujours réalisée en fusion et en solidification dans le but

d'obtenir des valeurs précises du liquidus et du solidus en ne considérant que les températures de début de pic (ceci dans le cas où il n'y aurait pas de problème de germination).

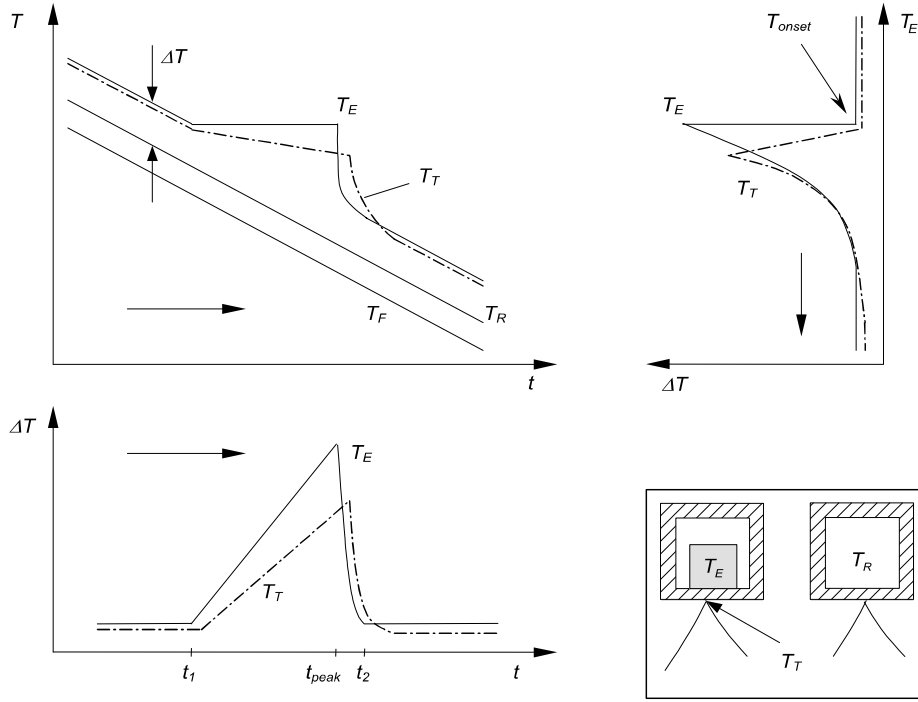


Figure 4.2 : Courbes de refroidissement et courbes DTA correspondantes dans le cas d'une réaction exothermique (solidification) pour un corps pur, sans surfusion de germination. La forme de la courbe DTA est différente si on considère la température mesurée par le thermocouple, T_T , ou la température exacte de l'échantillon, T_E . T_R et T_F correspondent respectivement aux températures de la référence et du four.

Détermination de la chaleur latente de fusion et de l'évolution de la fraction de solide

Dans le cas d'un corps pur, la variation d'enthalpie de l'échantillon et de la référence pendant la chauffe (ou le refroidissement) du système peut être décrite par un bilan de chaleur intégré sur le volume global d'un creuset (pas de convection ni de radiation). On fait bien sûr l'hypothèse que la température du creuset et de l'échantillon est la même. Le bilan de chaleur du creuset contenant l'échantillon et du creuset de référence (dans notre cas ce creuset est vide) s'écrit donc respectivement :

$$m_E \frac{dH_E^m}{dt} + m_{cr} \frac{dH_{cr}^m}{dt} = -hS(T_E - T_F) \quad (4.1)$$

$$m_{cr} \frac{dH_{cr}^m}{dt} = -hS(T_{cr} - T_F) \quad (4.2)$$

où H_E^m , H_{cr}^m , et m_E , m_{cr} correspondent à l'enthalpie massique et la masse de l'échantillon et des creusets de référence et contenant l'échantillon, respectivement. h est le coefficient de transfert

de chaleur, S correspond à la surface par laquelle s'effectue l'échange de chaleur. T est la température, les indices E , cr et F correspondant respectivement à l'échantillon, au creuset et au four. Il faut remarquer que H_{cr}^m apparaissant dans l'équation (4.1) a la même forme que H_{cr}^m de l'équation (4.2) mais qu'un indice « ' » a été ajouté pour spécifier qu'à un temps donné, les températures du creuset contenant l'échantillon et le creuset de référence sont respectivement T_E et T_{cr} . En tenant compte de la chaleur spécifique du creuset, Cp_{cr} (les creusets de référence et contenant l'échantillon sont rigoureusement identiques), il vient en soustrayant (4.2) de (4.1) :

$$m_E \frac{dH_E^m}{dt} + m_{cr} Cp_{cr} \left(\frac{dT_E}{dt} - \frac{dT_{cr}}{dt} \right) = -hS(T_E - T_{cr}) \quad (4.3)$$

Pour une transformation isotherme, on a :

$$\frac{dT_E}{dt} = 0$$

Par ailleurs,

$$\frac{dH_E^m}{dt} = -\frac{L_f}{\rho} \frac{df_s}{dt}$$

où L_f est la chaleur latente de fusion volumique. L'équation (4.3) devient donc :

$$m_E \frac{L_f}{\rho} \frac{df_s}{dt} = hS(T_E - T_{cr}) - m_{cr} Cp_{cr} \frac{dT_{cr}}{dt} \quad (4.4)$$

Dans le cas où le creuset de référence suit la vitesse de refroidissement \dot{T} imposée par le four, nous avons :

$$m_E \frac{L_f}{\rho} \frac{df_s}{dt} = hS(T_E - T_{cr}) - m_{cr} Cp_{cr} \dot{T} \quad (4.5)$$

D'où l'évolution de la fraction de solide :

$$f_s(t) = \frac{\rho}{m_E L_f} \left[hS \int_0^t (T_E - T_{cr}) dt' - (m_{cr} Cp_{cr} \dot{T} \cdot t) \right] \quad (4.6)$$

où le temps $t = 0$ est pris au départ de la transformation. On constate que, mis à part le terme en \dot{T} qui correspond à la différence de la variation de chaleur spécifique du creuset contenant l'échantillon et du creuset de référence, la fraction de solide est proportionnelle à l'aire du pic DTA :

$$f_s(t) = M \int_0^t \Delta T(t') dt' \quad (4.7)$$

M un facteur de calibration déterminé pour chaque système qui permet d'annuler le terme en \dot{T} par extrapolation des résultats à vitesse de refroidissement nulle. Le creuset de référence étant vide, la température de la référence est identique à celle du creuset, donc :

$$\Delta T = T_E - T_R$$

La détermination de l'évolution de la fraction de solide est donc extrêmement dépendante de la forme du pic DTA (voir figure 4.3). C'est pourquoi les limitations de cette technique rendent l'évaluation de la fraction de solide très qualitative :

- en considérant le fait que la température de fin de pic n'est pas la température de fin de réaction (inertie du système), une erreur importante est réalisée lorsque l'aire du pic est utilisé pour le calcul de la fraction de solide. Remarquons que dans ce cas une correction du signal prenant en compte l'effet cinétique du chauffage/refroidissement peut être appliqué [105],
- la faible intensité des pics secondaires (réaction eutectique par exemple), spécialement pour les alliages multicomposés, ne permet pas une bonne détermination de la fin de la réaction,
- il est difficile pour certains alliages d'évaluer la température du liquidus. En effet, à cause de la petite taille des échantillons, une surfusion importante de germination peut apparaître au cours du refroidissement.

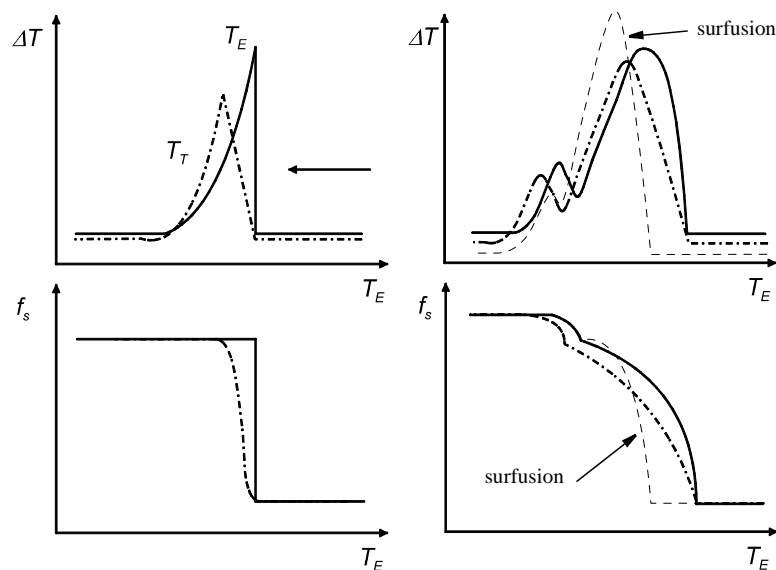


Figure 4.3 : Détermination de l'évolution de la fraction de solide par intégration du pic DTA au cours de la solidification. Dans le cas d'un corps pur (à gauche), on notera l'effet important de la mesure de la température par le thermocouple (courbe T_T) sur la fraction de solide. Il semble donc, à tort, que le corps étudié ne soit pas un corps pur. Dans le cas d'un alliage (à droite), ajouté au décalage dû à la mesure du thermocouple, la surfusion de germination modifie fortement la courbe $f_s(T)$ (courbe en traitillés).

4.2.2. L'analyse thermique à double creuset imbriqué, ATDC ou SPTA

Présentation

Comme le montre la figure 4.4, le dispositif SPTA est composé d'un creuset interne contenant l'échantillon et entouré d'un creuset externe avec un minimum de contact entre eux. Le système est placé dans un four contrôlé sous argon. Le matériau choisi pour le creuset externe est le nickel pur pour assurer une uniformisation de la température dans ce milieu. Le creuset interne a été usiné dans du nitrure de bore pour sa bonne conductivité thermique et pour sa faible mouillabilité (et faible réactivité) avec les alliages métalliques. Les températures sont mesurées au centre de l'échantillon et dans une paroi du creuset externe par des thermocouples de type S.

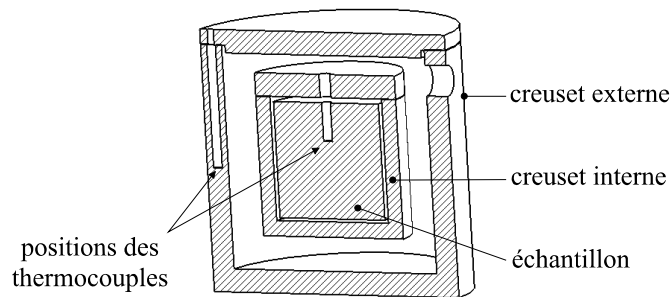


Figure 4.4 : Représentation schématique du système de double creuset imbriqué utilisé en SPTA. Ce système est ensuite inséré dans un four.

Le volume typique des échantillons est d'environ 2 cm³. Le four et les matériaux utilisés permettent des analyses à des températures comprises entre 500 °C et 1300 °C. La précision des mesures est du dixième de degré et les rampes de chauffe/refroidissement ne peuvent être supérieures à 8°C/min et restent constantes au cours d'une expérience.

Remarquons qu'à la différence de la DTA, la SPTA n'a pas besoin de calibration.

Technique d'analyse et détermination de la fraction de solide

Les températures mesurées au cours d'un essai SPTA ainsi que la configuration relativement simple du dispositif, nous permettent d'étudier les phénomènes de transfert de chaleur lors du refroidissement du système. Pour cela, une représentation simplifiée du système, déjà utilisée par Zou [101], a été considérée (fig. 4.5).

En tenant compte du changement de phase, la relation suivante décrit le bilan de chaleur résultant :

$$\frac{dH_E}{dt} = \left(\rho C_p \frac{dT_E}{dt} - L_f \frac{df_s}{dt} \right) = -h^* A (\Delta T) \quad (4.8)$$

avec dH_E/dt qui correspond à l'extraction de chaleur au cours du refroidissement par unité de volume de l'échantillon, ρ la masse spécifique de l'échantillon, C_p la chaleur spécifique massique, T_E la température mesurée dans l'échantillon, t le temps, L_f la chaleur latente de fusion volumique, f_s la fraction de solide, h^* le coefficient de transfert de chaleur équivalent du système, A une aire spécifique de l'ensemble et ΔT la différence de température entre l'échantillon et le creuset externe, $\Delta T(t) = (T_E(t) - T_{ext}(t))$.

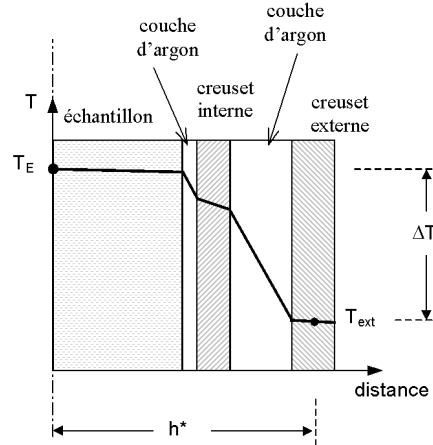


Figure 4.5 : Représentation schématique des échanges thermiques présents dans le système SPTA au cours de son refroidissement. h^* correspond au coefficient global de transfert de chaleur entre l'échantillon et le creuset externe.

Dans le cas monodimensionnel stationnaire, le coefficient de transfert de chaleur équivalent peut être considéré comme la combinaison des conductions à travers les différents matériaux et des transferts thermiques associés aux lames d'argon. h^* s'exprime donc comme [101] :

$$\frac{1}{h^*} = \frac{1}{\kappa_E/R_E} + \frac{1}{h_{Ar,1}} + \frac{1}{\kappa_{int}/d_{int}} + \frac{1}{h_{Ar,2}} + \frac{1}{\kappa_{ext}/d_{ext}}$$

où R_E , d_{int} et d_{ext} sont le rayon de l'échantillon, l'épaisseur du creuset interne et la demi-épaisseur du creuset externe (distance entre la paroi interne et le thermocouple), et, κ_E , κ_{int} et κ_{ext} leurs conductibilités thermiques respectives. $h_{Ar,1}$ et $h_{Ar,2}$ correspondent aux coefficients de transfert de chaleur des couches d'argon représentées sur la figure 4.5.

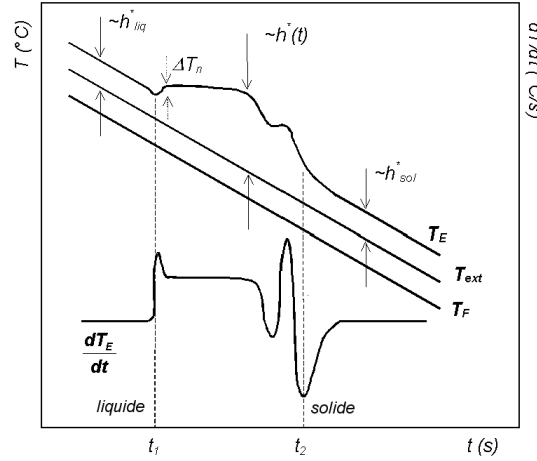


Figure 4.6 : Courbes de refroidissement de l'échantillon, T_E , du creuset externe, T_{ext} , du four, T_F et évolution de la vitesse de refroidissement de l'échantillon dT_E/dt mesurée en SPTA.

Pour résoudre ce problème il est important de rappeler que df_s/dt est nul lorsqu'il n'y pas de changement de phase (l'échantillon est complètement solide ou liquide), que la vitesse de chauffe/refroidissement est constante et que Cp est considéré constant au cours de l'essai (donc $\langle \rho Cp \rangle = \rho Cp$). D'après la relation (4.8), h^* dépend donc uniquement de la différence de température entre l'échantillon et le creuset externe (fig. 4.6). Les échanges thermiques entre ces deux objets sont fortement dépendants du contact thermique de l'échantillon avec son creuset. En effet, le coefficient de transfert thermique, lorsque l'échantillon est liquide, est beaucoup plus important que s'il est solide (phénomène de retrait, formation de lame d'argon). Dans ces conditions, 3 coefficients différents ont été considérés : lorsque l'échantillon est solide, h^*_{sol} , liquide, h^*_{liq} et pendant la solidification, $h^*(t)$. Pour ce dernier cas, le coefficient peut être considéré comme une fonction de la fraction de solide [101]. Une méthode itérative a donc été utilisée pour le calculer, la première valeur étant choisie comme la valeur moyenne entre le coefficient de transfert à l'état solide et celui à l'état liquide :

$$h^{*i=0} = \bar{h}^* = \frac{h^*_{liq} + h^*_{sol}}{2}$$

$$h^{*i}(f_s^{i-1}(t)) = (h^*_{liq}(1 - f_s^{i-1}(t)) + h^*_{sol}f_s^{i-1}(t)) \text{ pour } i \geq 1 \quad (4.9)$$

où i est le nombre d'itérations. Les coefficients de transfert thermique équivalents intervenant lorsque l'échantillon est totalement liquide et totalement solide, h^*_{liq} et h^*_{sol} , sont calculés à partir de la relation (4.8). En effet, dans ce cas stationnaire, la vitesse de refroidissement et la différence de température ΔT sont constants, les coefficients peuvent donc être aisément déterminés par la relation suivante (voir fig. 4.6) :

$$h^*_{liq/sol} = -\frac{\rho Cp(dT_E/dt)}{A(\Delta T)}$$

Après intégration de l'équation (4.8) en fonction du temps de solidification t , l'évolution de la fraction de solide en fonction du temps peut être estimée :

$$f_s^{i=0}(t) = \frac{\rho C_p}{L_f} \int_0^t \frac{dT_E}{dt} dt' + \frac{A}{L_f} \bar{h}^* \int_0^t (T_{ext}(t') - T_E(t')) dt'$$

$$f_s^i(t) = \frac{\rho C_p}{L_f} \int_0^t \frac{dT_E}{dt} dt' + \frac{A}{L_f} \int_0^t h^{*i}(f_s^{i-1}(t')) (T_{ext}(t') - T_E(t')) dt' \quad \text{pour } i \geq 1 \quad (4.10)$$

La relation (4.8) est illustrée sur la figure 4.7. Par intégration, l'évolution de la fraction de solide en fonction du temps est déterminée (pointillés). Il devient de ce fait facile de déterminer la fraction de solide en fonction de la température de l'échantillon en utilisant la courbe de refroidissement $T_E(t)$.

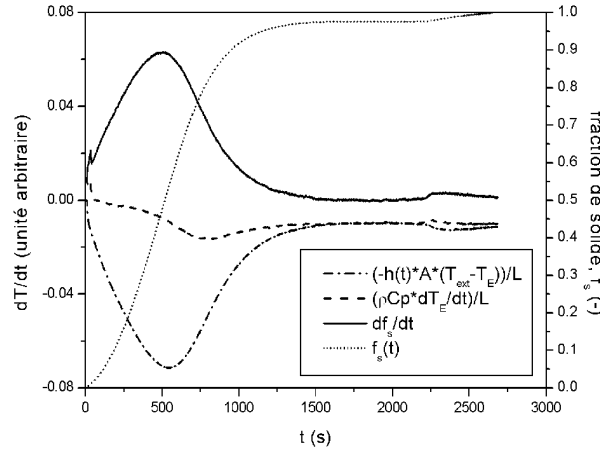


Figure 4.7 : Illustration du calcul de l'évolution de la fraction de solide en fonction du temps, $f_s(t)$, à l'aide des relations (4.8) et (4.10) pour l'alliage C97.

4.3. EXPÉRIENCES DE SOLIDIFICATION

4.3.1. Coulées industrielles

Les échantillons industriels sont coulés de manière continue par le partenaire Swissmetal, sous forme de "fils" de section circulaire ($\varnothing = 18$ mm). Après traitement thermique pour homogénéisation, ces produits sont laminés puis tréfilés en fonction des diamètres désirés.

Les coulées sont effectuées sur une installation de coulée continue verticale Outokumpu, composée d'un four à induction contenant le métal liquide, d'un refroidisseur et d'un système de tirage vertical. Le mode de tirage est complexe, dans notre cas, décrivant un cycle d'avance-pause-recul-pause, à des vitesses variables comprises entre 100 et 400 mm/min. Dans le but

d'affiner la structure et d'augmenter l'homogénéité de l'alliage, un système de brassage électromagnétique est utilisé. Une représentation schématique de l'installation est donnée à la figure 4.8.

Le procédé de coulée continue verticale est simple dans son principe. Une perche de démarrage qui traverse la lingotière est plongée dans le bain liquide (elle jouera le rôle de germe pour débiter la coulée). Cette perche est ensuite tirée verticalement, guidant le métal liquide dans la lingotière où il est refroidi. Le refroidissement est de type radial, le centre de l'échantillon est alors plus chaud que la surface externe pour une même section transversale. L'interface solide/liquide a donc une morphologie courbe dans le plan longitudinal (fig. 4.8), caractéristique de la coulée continue.

Le principe du brassage électromagnétique est basé sur l'action d'un champ magnétique créé par des bobines de cuivre (refroidies par circulation d'eau) sur le métal liquide. En effet, il a été vu au chapitre 2 que le champ magnétique induit des forces de convection au sein du liquide, assurant un brassage vigoureux. La puissance standard utilisée au cours des coulées est de quelques kW. Le brasseur est composé de plusieurs spires (tubes de cuivre refroidis par eau) positionnées sous le refroidisseur et derrière la lingotière (fig. 4.8). Le retrait de solidification (contraction de l'échantillon par refroidissement), ainsi que les avances par à coup, permettent au métal de ne pas coller au graphite de la lingotière lors du tirage (le graphite a tout de même un effet lubrifiant). Dans notre cas, le métal ainsi solidifié est enroulé en continu sur des bobines pour le stockage au cours de la coulée.

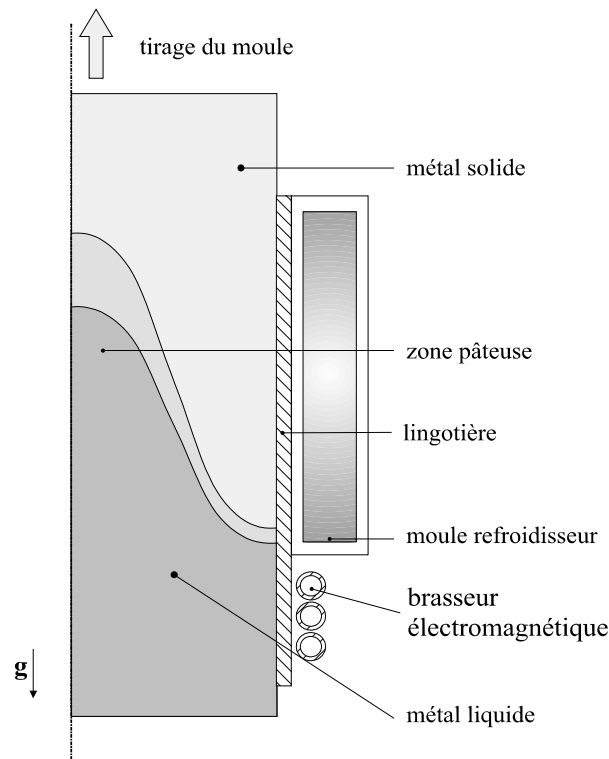


Figure 4.8 : Représentation schématique du procédé de coulée continue avec brassage électromagnétique utilisé par le partenaire industriel.

4.3.2. Solidification dirigée en laboratoire

Conception

Dans le but d'étudier l'effet du brassage électromagnétique (EMS) sur la structure de solidification des alliages cuivreux industriels à l'échelle du laboratoire, un équipement de solidification dirigée de type Bridgman avec brasseur électromagnétique a été conçu. L'idée était d'avoir un contrôle maximum sur la majorité des paramètres mis en jeu lors de la coulée continue avec EMS, ce qui est impossible dans un environnement industriel. La solidification Bridgman a été choisie dans le but de concentrer les recherches sur les mécanismes d'affinage de grains induits par le mouvement du liquide, sans se soucier de l'influence que pourrait avoir la morphologie courbée de l'interface solide/liquide qui apparaît en coulée continue (vitesse de tirage 100 fois plus rapide qu'en solidification Bridgman).

Un four de type Bridgman est généralement composé d'une partie chaude et d'une partie froide, créant ainsi un gradient thermique plus ou moins important sur une faible distance [106, 107]. Sur notre installation, la partie chaude est constituée d'un corps de chauffe en carbure de silicium (SiC), la partie froide correspondant à une lame d'air (localisée à la sortie du SiC) refroidie par un moule en cuivre dans lequel circule de l'eau. Le corps de chauffe est parcouru par un courant de forte intensité, dissipant par effet joule une énergie calorifique importante fonction de la résistivité du SiC. De par la géométrie du corps de chauffe (voir figure 4.9 et 4.11), la région centrale (parois plus minces, donc résistivité élevée) est beaucoup plus chaude que les extrémités. Il y a donc un gradient thermique qui s'établit dans la région chaude. En fait, la solidification des alliages se fera dans cette partie du four sous le gradient thermique imposé par la géométrie du corps de chauffe et les échanges de chaleur avec l'extérieur. Le gradient thermique dans le four peut être caractérisé par la mesure de température en fonction de la position. La figure 4.12 montre ce profil de température du four Bridgman à vide. Le four et plus spécifiquement la région proche du corps de chauffe, ont été conçus de façon à permettre une bonne mobilité verticale de la bobine d'induction, de façon à contrôler la distance entre l'inducteur et l'interface solide/liquide au cours de la solidification.

La boucle d'induction formée par l'inducteur vient entourer le corps de chauffe de façon à ce que l'inducteur soit positionnable verticalement et que le contrôle de l'induction soit totalement indépendant du système de chauffage du four (fig. 4.11). Un système d'isolation performant a dû être conçu pour isoler la bobine du corps de chauffe, sans gêner son positionnement. Dans le but d'assurer un brassage optimal (induit par un champ magnétique inhomogène, voir chapitre 2) la géométrie de l'inducteur a été choisie comme une simple spire d'induction. L'inducteur utilisé sur notre installation est une bobine à une spire de diamètre intérieur de 52 mm pour permettre l'insertion du corps de chauffe ($\varnothing_{ext} = 50$ mm). Le tube en cuivre refroidi à l'eau composant la bobine, est de diamètre extérieur 6 mm et intérieur 4 mm (fig. 4.11). L'inducteur est connecté à un générateur EMA d'une puissance maximale de 40 kW, d'une fréquence maximale de 10 kHz et d'une tension maximale de 250 V.

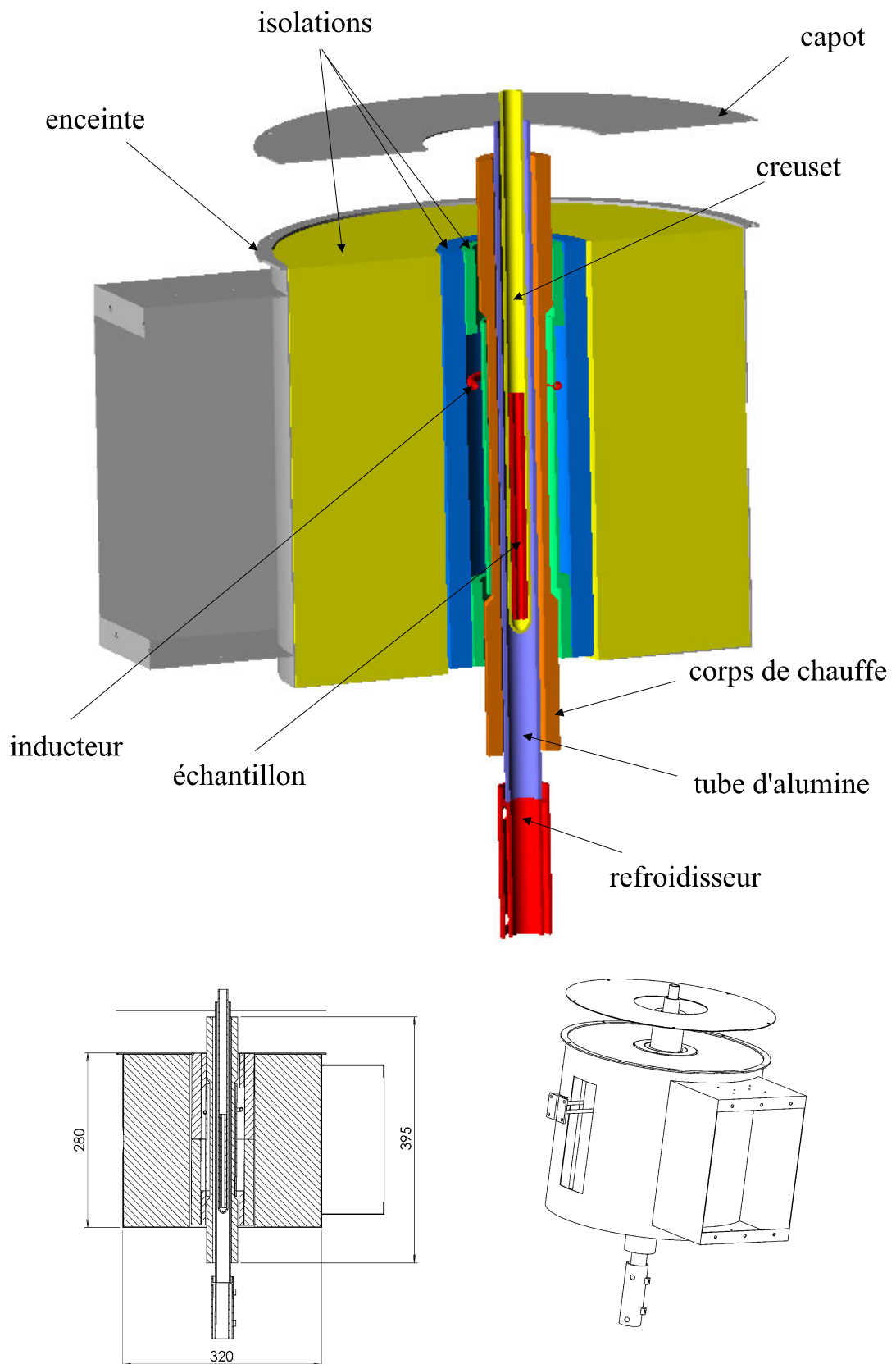


Figure 4.9 : Illustration générale du four Bridgman avec brassage électromagnétique conçu au laboratoire (les côtes sont en millimètre).

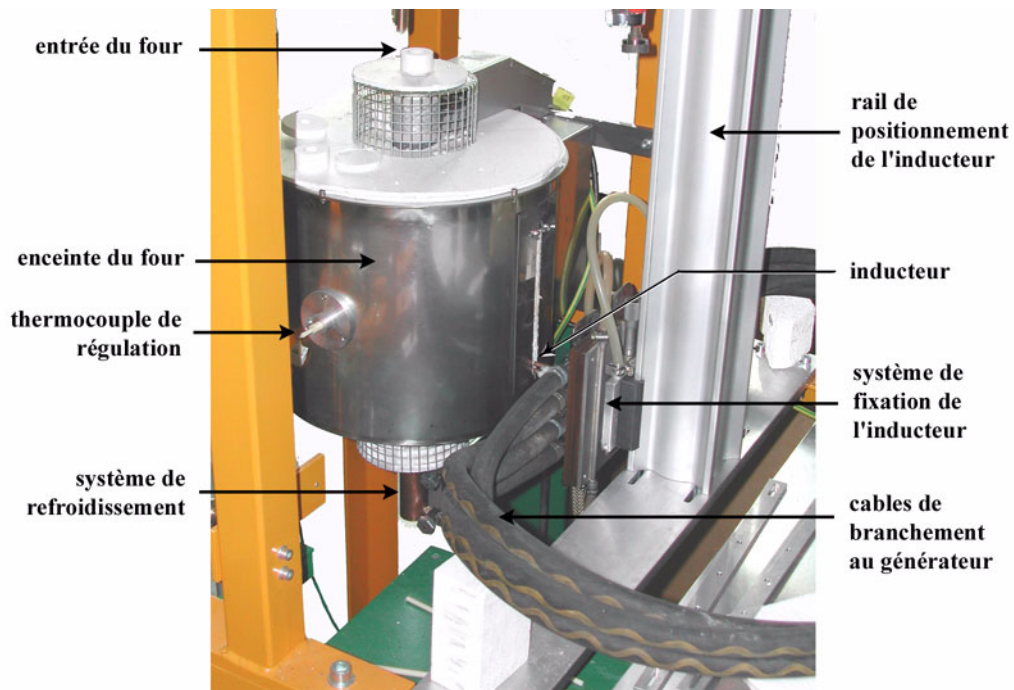


Figure 4.10 : Photographie de l'installation utilisée. Le four Bridgman est muni d'un appareillage permettant la création de brassage électromagnétique.

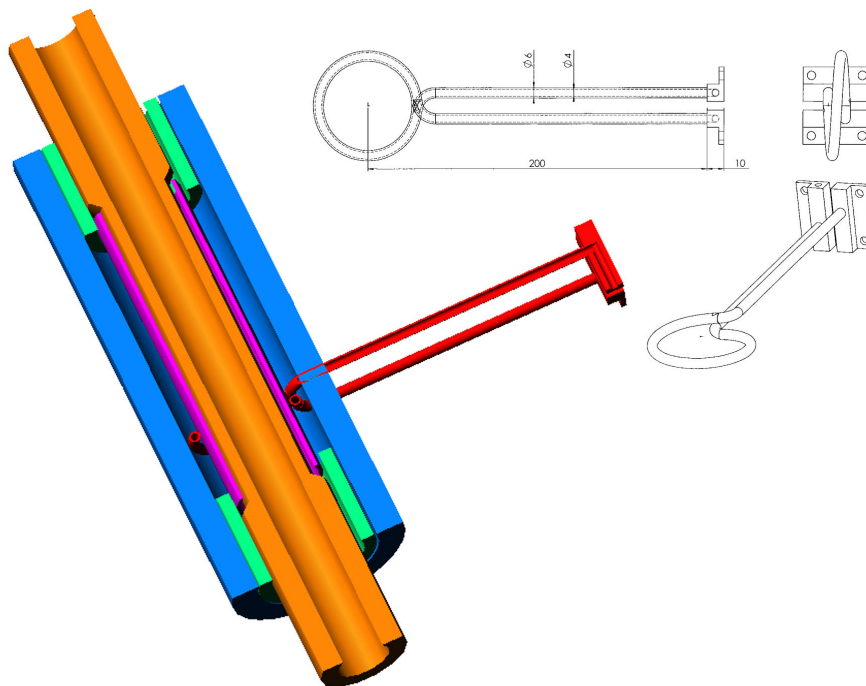


Figure 4.11 : Représentation de la bobine d'induction utilisée dans le four Bridgman et de sa position par rapport au corps de chauffe.

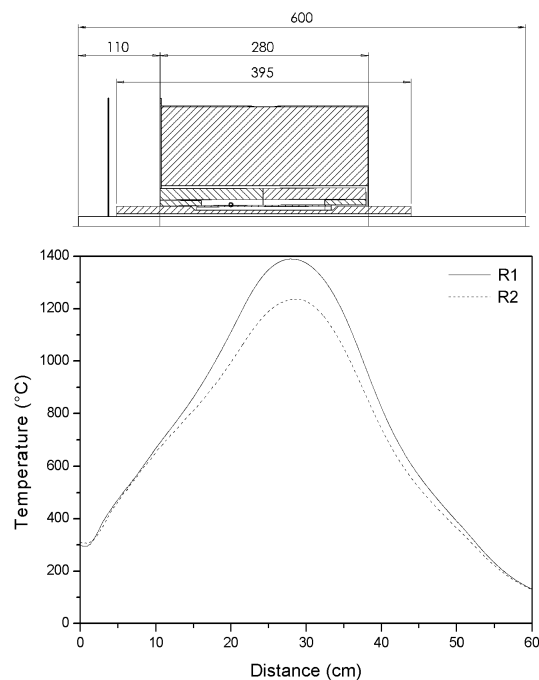


Figure 4.12 : Profils de température mesurés dans le four Bridgman à vide (sans échantillon) pour deux valeurs de régulations R1 et R2. Ces valeurs de régulation correspondent respectivement à une température maximale de 1390 et 1210 °C mesurées dans la partie la plus chaude du four.

Remarquons que, pour ce type de générateur, il n'est pas possible de faire varier la fréquence et la tension indépendamment de la puissance. De plus, la puissance maximale correspond à la puissance délivrée aux bornes du générateur. Les pertes le long des connecteurs (fils de cuivre refroidis permettant le contact entre le générateur et la bobine) ne sont pas prises en compte.

Le mode de tirage est vertical et s'exécute de façon continue à des vitesses comprises entre 10^{-7} et 10^3 mm/min. Les diamètres des échantillons peuvent être de 3, 6, 12 ou 15 mm.

Mode opératoire

L'échantillon, de longueur égale à 150 mm, est placé dans un tube en quartz transparent de 600 mm de long sous atmosphère inerte (argon) et est positionné de façon à ce qu'il soit totalement liquide (partie la plus chaude du four). Après une mise à l'équilibre de 45 min, le creuset est descendu vers le bas à la vitesse désirée, l'échantillon est alors solidifié directionnellement au voisinage de la partie froide du four. L'interface solide/liquide est plane pour des vitesses de tirages réduites.

4.4. MÉTALLOGRAPHIE

Dans le but d'observer les morphologies des grains, l'orientation des grains et l'espacement secondaire des bras de dendrite, les échantillons sont coupés longitudinalement et polis selon

une procédure standard : polissage sur papiers en carbure de silicium (SiC) d'indice 200, 320, 500, 1000, 2400 et 4000, plus polissage sur feutre préalablement recouverts de particules de diamant de 1 μm . Entre chaque polissage, les échantillons sont nettoyés à l'eau et au savon puis à l'éthanol.

Après le polissage, les macro- ou microstructures sont révélées par une attaque chimique spécifique :

- attaque macroscopique, pour révéler les grains : la solution utilisée est à base d'acide chlorhydrique : 5 ml d'HCl (32%), 100 ml de $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ (96%), 1g FeCl_3 ,
- attaque microscopique, pour révéler la microstructure : une solution à base d'acide sulfurique plus ou moins diluée à l'eau distillée en fonction de l'alliage à attaquer, a été utilisée dans ce cas : 800 ml d'eau distillée, 104 ml de H_2SO_4 (95-97%), 12g de NaCl et 16g de $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$.

Les alliages de cuivre s'oxydant très rapidement au contact d'un acide, les attaques chimiques sont effectuées en frottant la surface à attaquer à l'aide d'un coton imbibé de la solution chimique appropriée, qui va enlever l'oxyde formé. Après chaque frottement, la surface est rincée à l'alcool absolu pour des attaques "macroscopiques" ou à l'eau pour les attaques "microscopiques".

4.5. OBSERVATIONS ET MESURES PAR MICROSCOPIE ÉLECTRONIQUE À BALAYAGE

4.5.1. Observations topographiques et contraste chimique

La microscopie électronique à balayage (MEB) a été utilisée comme moyen d'observation en complément de la microscopie optique. On distingue plusieurs types d'électrons émis par l'échantillon, lorsqu'il est excité par un faisceau électronique incident. Seuls deux types de ces électrons sont utilisés :

- les électrons secondaires (Secondary Electrons, SE). De faible énergie, 0 à 30 eV, ils proviennent généralement d'électrons de valence ou de la bande de conduction. Leur faible énergie limite leur production à l'extrême surface de l'échantillon (quelques angströms). Leur nombre est fortement dépendant de l'angle entre la surface et le faisceau incident, mais très peu du numéro atomique. Ces électrons donnent donc des informations principalement liés à la topographie de l'échantillon.
- les électrons rétrodiffusés (Back-Scattered Electrons, BSE). L'énergie de ces électrons étant plus élevée, ils proviennent d'une profondeur de quelques dizaines de nm. La production d'électrons rétrodiffusés, dépend du nombre atomique de l'élément, donc de la composition chimique. Ces électrons sont donc utilisés pour des mesures qualitatives de contraste chimique. Sur les images MEB les éléments lourds seront observés dans des tons plus clairs (d'avantage d'électrons arrivent dans le détecteur).

En association avec la microscopie électronique à balayage, certaines autres techniques peuvent être utilisées : la mesure de concentration par spectroscopie des rayons-X et la mesure d'orientation par diffraction des électrons rétrodiffusés.

4.5.2. Mesures par EDX (Energy Dispersive X-ray Spectrometer)

Cette technique basée sur la spectrométrie des rayons-X émis par un échantillon sous l'effet d'un faisceau incident d'électrons est une méthode de micro-analyse chimique. Le faisceau incident pouvant être focalisé de manière très précise sur l'échantillon, cela permet une résolution de l'ordre du micromètre. Dans notre cas nous avons utilisé le système EDX installé dans un microscope électronique à balayage (MEB) à effet de champ Philips XL-F 30, disponible au centre interdisciplinaire de microscopie électronique de l'EPFL (CIME). La méthode d'analyse consiste à identifier les pics du spectre émis dans le volume d'analyse. En effet le volume d'émission est déterminé par la diffusion des électrons incidents dans l'échantillon. Or cette diffusion augmente avec la profondeur de pénétration. Par conséquent, la résolution spatiale de l'analyse EDX, est définie par le volume d'émission des photons X et non uniquement par le diamètre de la sonde d'électrons [108] (fig. 4.13, effet de poire).

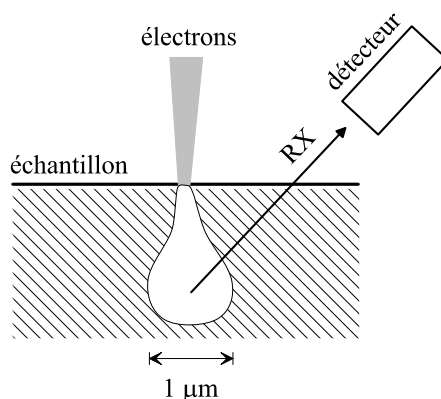


Figure 4.13 : Principe d'analyse EDX et volume d'émission de photons X d'un élément.

La résolution spatiale d'une telle analyse couplée avec un MEB dépend fortement de la tension d'accélération employée et du type d'échantillon. Le volume d'émission augmente avec la tension d'accélération et diminue avec le numéro atomique de l'élément qui compose l'échantillon. Dans le cas du cuivre pur, pour une tension d'accélération de 15 keV, le volume d'analyse est d'environ $1 \mu\text{m}^3$. La précision sur les mesures est de 1% avec un seuil de détection des concentrations de l'ordre de 10^{-3} . La rugosité des échantillons doit être inférieure au μm pour éviter des interactions avec les photons X émis, et générer des erreurs dans le spectre d'analyse.

Cette analyse quantitative a été employée pour déterminer les concentrations moyennes de chaque élément constituant les composés interdendritiques présents dans les échantillons industriels et dans ceux élaborés au laboratoire.

4.5.3. Mesures d'orientation par "Electron Back-Scattered Diffraction" (EBSD)

Technique d'analyse

Cette technique, décrite avec précision dans la thèse d'Henry [109], est basée sur l'interaction des électrons retrodiffusés et des plans cristallographiques de l'échantillon. Respectant la loi de Bragg, deux cônes d'électrons diffractés sont ainsi créés pour chaque direction cristallographique. Ces cônes de diffraction peuvent être imagés à l'aide d'un écran de phosphore et d'une caméra numérique connectée à cet écran. L'intersection des cônes d'électrons diffractés avec l'écran de phosphore apparaît sous forme de bandes, appelées bandes de Kikuchi (fig. 4.14(a)). Chaque bande correspond à un plan cristallin. Le logiciel d'EBSD permet alors l'indexation automatique des positions des bandes de Kikuchi (fig. 4.14(b)). Par conséquent, en comparant avec les données théoriques, les orientations tridimensionnelles des plans cristallins peuvent donc être calculées.

Le dispositif EBSD est intégré à l'appareil MEB Philips XL-F 30, disponible au CIME. Le détecteur H300 de type NL-1 développé par la société HKL Technology, est composé d'un écran phosphore et d'une caméra numérique CCD 1300x1000 pixels (numérisation sur 12 bits). La vitesse maximale d'acquisition de cette caméra est de 8 images/secondes à haute résolution et de 45 images/secondes en mode «binning» 8x8 (méthode de prise de moyenne sur plusieurs images). Le logiciel Channel 5, développé également par HKL Technology, ainsi que les différents modules qui le composent (Flamenco, Twist, Tango, Mambo et Salsa), permettent de faire l'acquisition des données, de piloter le faisceau et la platine du microscope et d'analyser les résultats (cartographie, figures de pôle, statistiques ... etc.). Les résolutions spatiale et angulaire sont respectivement de 0.1 μm et de 1 degré au centre (faisceau non-incliné). La vitesse d'acquisition standard d'une carte EBSD est de 10 à 30 points par seconde. Le balayage de la surface peut se faire en mode faisceau (balayage du faisceau) pour de petites dimensions ou en mode platine (déplacement de la platine) pour couvrir des surfaces plus importantes.

Cette microscopie d'orientation a été utilisée dans le but de déterminer :

- la structure des grains : colonnaires ou équiaxes. Par comparaison des désorientations et du nombre de grains voisins, il est possible de déterminer le type de croissance,
- l'orientation des grains par rapport à une direction donnée. Chaque grain est comparé à une direction cristallographique ou spatiale (normale à la surface de l'échantillon par exemple).

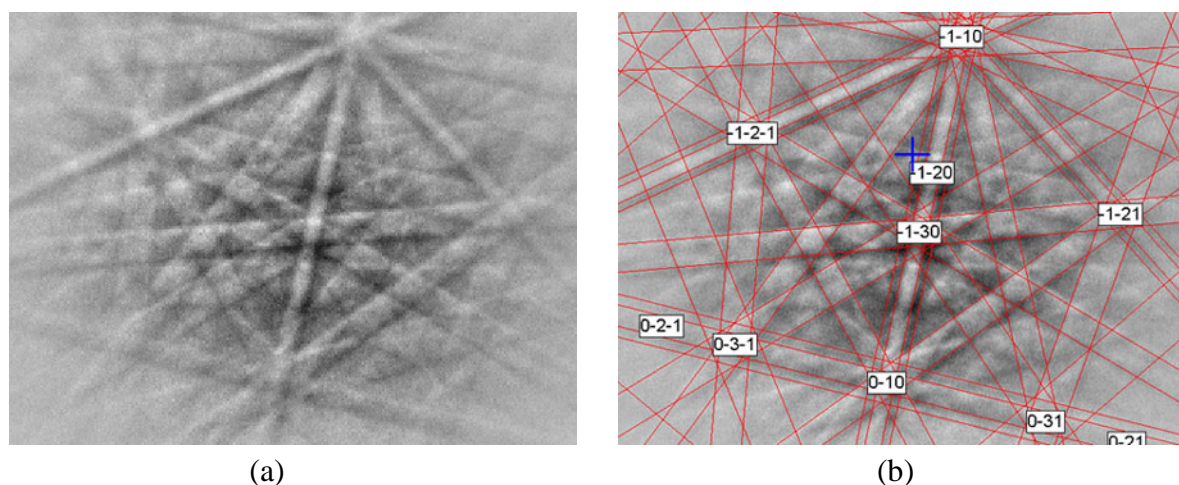


Figure 4.14 : Observation (a) et indexation (b) des bandes de Kikuchi.

Préparation des échantillons

Les différents échantillons sont polis au papier de carbure de silicium puis en utilisant des particules de diamètre de 6 et 1 μm de diamètre. Cependant, ce polissage induit des contraintes mécaniques à la surface de l'échantillon, qui gênent l'analyse EBSD. En effet, le cuivre est un matériau relativement mou, à fortiori avec la présence des billes de plomb aux régions interdentritiques. Il s'écrouit donc de manière importante lors du polissage. Cet écrouissage de surface a un effet très négatif sur la diffraction des électrons secondaires. Les contrastes de bande de Kikuchi obtenus, lors de l'analyse EBSD, sont mauvais, ne permettant pas une bonne indexation. Dans le but de remédier à cet effet, la surface de l'échantillon est polie à 1 μm puis attaquée chimiquement, cela plusieurs fois. Les attaques chimiques relaxent la surface, limitant la présence de zones écrouies. Avant d'analyser l'échantillon, la surface a donc été attaquée une dernière fois.

Bien évidemment cette attaque chimique augmente la rugosité de la surface, diminuant ainsi la précision de la mesure, mais ce traitement chimique est indispensable. En tenant compte de ce phénomène, il est important de rappeler qu'obtenir une bonne carte d'orientation n'est pas simple lorsqu'on analyse les alliages C97 et BZ4. Certaines zones encore écrouies peuvent ne pas être indexées par le système EBSD (points ou zones noirs).

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET NUMÉRIQUES



5.1. SOLIDIFICATION SOUS GRADIENT NUL

A partir des courbes de refroidissement obtenus en DTA et en SPTA, l'évolution de la fraction de solide avec la température de l'échantillon a pu être déduite, pour les deux alliages C97 et BZ4, à l'aide de la procédure déterminée au chapitre précédent. Les alliages ont été solidifiés avec une vitesse de refroidissement constante, égale à -5 °C/min .

5.1.1. Calculs de l'évolution de la fraction de solide

Analyses DTA

Les figures 5.1(a) et 5.1(b) présentent les courbes de refroidissement mesurées par DTA et les fractions de solide déduites, pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. Rappelons brièvement que l'évolution de la fraction de solide est calculée en intégrant la courbe DTA entre le début du premier pic et la fin du dernier pic. Les courbes obtenues en DTA correspondent généralement à la différence de température, $T_E - T_R$, entre échantillon et référence, en fonction de la température de référence, T_R . Cependant, en utilisant les courbes de refroidissement, il est nécessaire de calculer, dans notre cas, les courbes DTA en fonction de la température de l'échantillon, T_E , avant l'intégration. En effet, cela permet d'obtenir l'évolution de la fraction de solide en fonction de T_E (voir chapitre 4). A partir des courbes $f_s(T_E)$ ainsi déterminées, on peut déduire les valeurs de la température du liquidus : 1061 °C pour l'alliage C97 et 994 °C pour l'alliage BZ4. En ce qui concerne les températures de solidus, les valeurs obtenues sont de 946 °C et 905 °C . Les températures pour lesquelles les différentes phases se solidifient peuvent alors être définies.

Dans le cas de l'alliage C97, la phase primaire se solidifie à partir de 1061 °C , la seconde phase n'apparaissant qu'à partir de 1055 °C . A ce stade, la fraction de solide est d'environ 0.98. L'échantillon est donc quasiment solide; seul reste un liquide interdendritique qui précipitera de 960 à 946 °C .

Concernant l'alliage BZ4, la phase primaire se solidifie rapidement à partir de 994 °C . La fraction de solide atteint, rapidement, une valeur supérieure à 0.9. On distingue, sur les courbes

dérivées des courbes DTA (fig. 5.2), les pics correspondants à la précipitation de la phase secondaire à 946 °C et à la fin de la réaction à 905 °C.

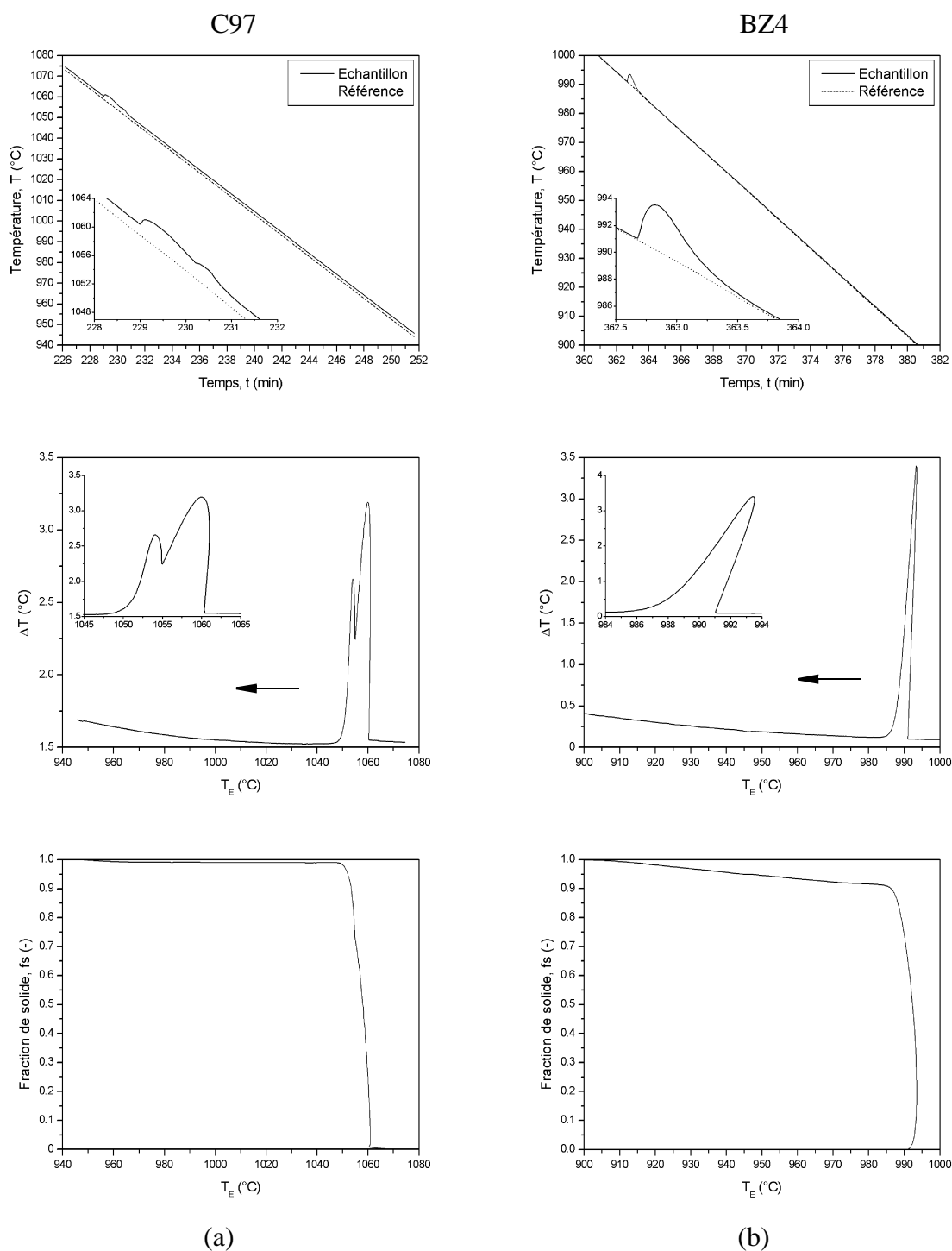


Figure 5.1 : Courbes de refroidissement, $T(t)$ (haut), courbes DTA, $\Delta T(T_E)$ (milieu) et évolution de la fraction de solide avec la température de l'échantillon, $f_s(T_E)$ (bas), pour l'alliage C97 (a) et BZ4 (b).

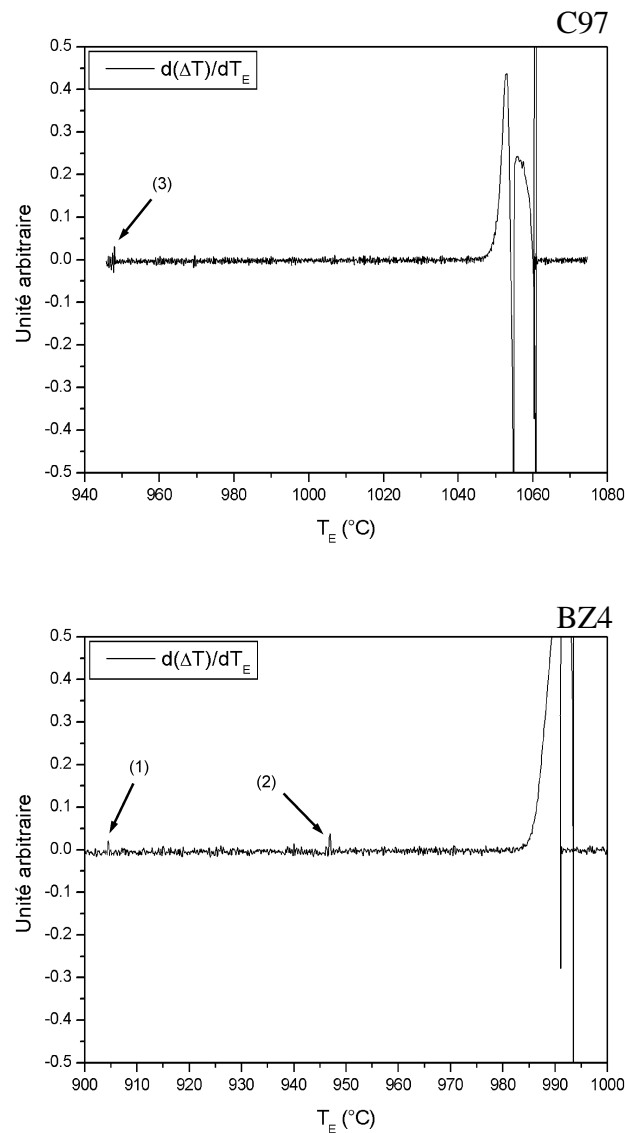


Figure 5.2 : Courbes dérivées par rapport à la température de l'échantillon, des courbes DTA des deux alliages. Les températures, pour lesquelles des réactions ont lieu, sont respectivement de 946 °C pour l'alliage C97 (noté (3)), de 947 °C (noté (2)) et 905 °C (noté (1)) pour l'alliage BZ4.

Ces courbes illustrent les différentes erreurs qui peuvent être faites lors de leur interprétation:

- Au voisinage du liquidus, on voit nettement un phénomène de recalescence^(a) sur les courbes $\Delta T(T_E)$, qui s'avère beaucoup plus marqué dans le cas du BZ4. Ce phénomène

(a). La recalescence est définie par une brusque augmentation de la température lors du refroidissement d'un métal, due à la libération de la chaleur latente (changement d'état), avec une variation d'enthalpie nulle ou même négative. Elle est d'autant plus importante que la surfusion de germination est élevée, mais résulte de la combinaison entre la germination et la croissance.

n'est pas mis en évidence lors d'analyses thermiques conventionnelles. Dans ce cas, les courbes DTA, à partir desquelles la majeure partie des interprétations est réalisée, correspondent à la différence de température en fonction de la température de référence, et non de celle de l'échantillon. C'est pourquoi, en plus d'une erreur sur la température du liquidus, la recalescence passe inaperçue.

- La fin de la réaction, obtenue pendant le refroidissement de ces deux alliages, est difficile à déterminer. En effet, la faible proportion des phases secondaires induit une faible intensité des pics correspondants. Ces réactions ne peuvent être détectées qu'en dérivant les courbes DTA (fig. 5.2).
- Il a été vu au chapitre 4 que la température de fin de pic DTA peut être considérée comme la température correspondant au maximum du dernier pic. Le calcul de l'évolution de la fraction de solide, s'effectuant par intégration du pic DTA, devient alors inexact. La température du solidus est donc erronée.

L'ensemble des difficultés d'interprétation des courbes DTA nous a donc incité à utiliser la SPTA pour la détermination de l'évolution de la fraction de solide et de la nature des différentes phases qui précipitent.

Analyses SPTA

Comme il a été vu dans le chapitre précédent, l'analyse SPTA consiste à mesurer la température du creuset externe en nickel et de l'échantillon pendant la solidification. Les courbes de refroidissement, correspondant aux alliages C97 et BZ4, sont présentées sur les figures 5.3(a) et 5.3(b), respectivement. Le changement d'état est facilement identifiable par le rejet de chaleur latente qui lui est associé. Ce rejet de chaleur a pour effet d'augmenter localement la température de l'échantillon. La fin de la réaction est beaucoup moins apparente. En effet, la solidification des phases secondaires libère très peu de chaleur, n'influençant pratiquement pas la courbe de refroidissement. Afin d'identifier la formation de ces phases, la dérivée de la courbe de refroidissement peut être employée.

Pour les deux alliages, un phénomène de recalescence est observé. Les valeurs mesurées de ces recalescences sont d'environ 3 °C et 17 °C pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. Ces différentes valeurs expliquent la forme de la courbe de refroidissement de l'échantillon. En effet, la forte recalescence observée pour l'alliage BZ4 impose un rejet de chaleur important et soudain, ce qui modifie l'allure générale de la courbe de refroidissement. On notera, l'effet du rejet de chaleur sur la température de l'enveloppe externe (voir fig. 5.3).

A l'aide des équations (4.8) et (4.10), l'évolution de la fraction de solide au cours du temps a été déterminée pour les deux alliages. Les différentes contributions des termes de l'équation (4.8) sont illustrées sur la figure 5.3. Grâce aux courbes de refroidissement de l'échantillon, on peut donc en déduire l'évolution de la fraction de solide avec la température de l'échantillon. Les températures du liquidus et du solidus peuvent alors être déterminées : $T_L = 1081 / 1012$ °C et $T_S = 901 / 842$ °C pour les alliages C97 et BZ4, respectivement.

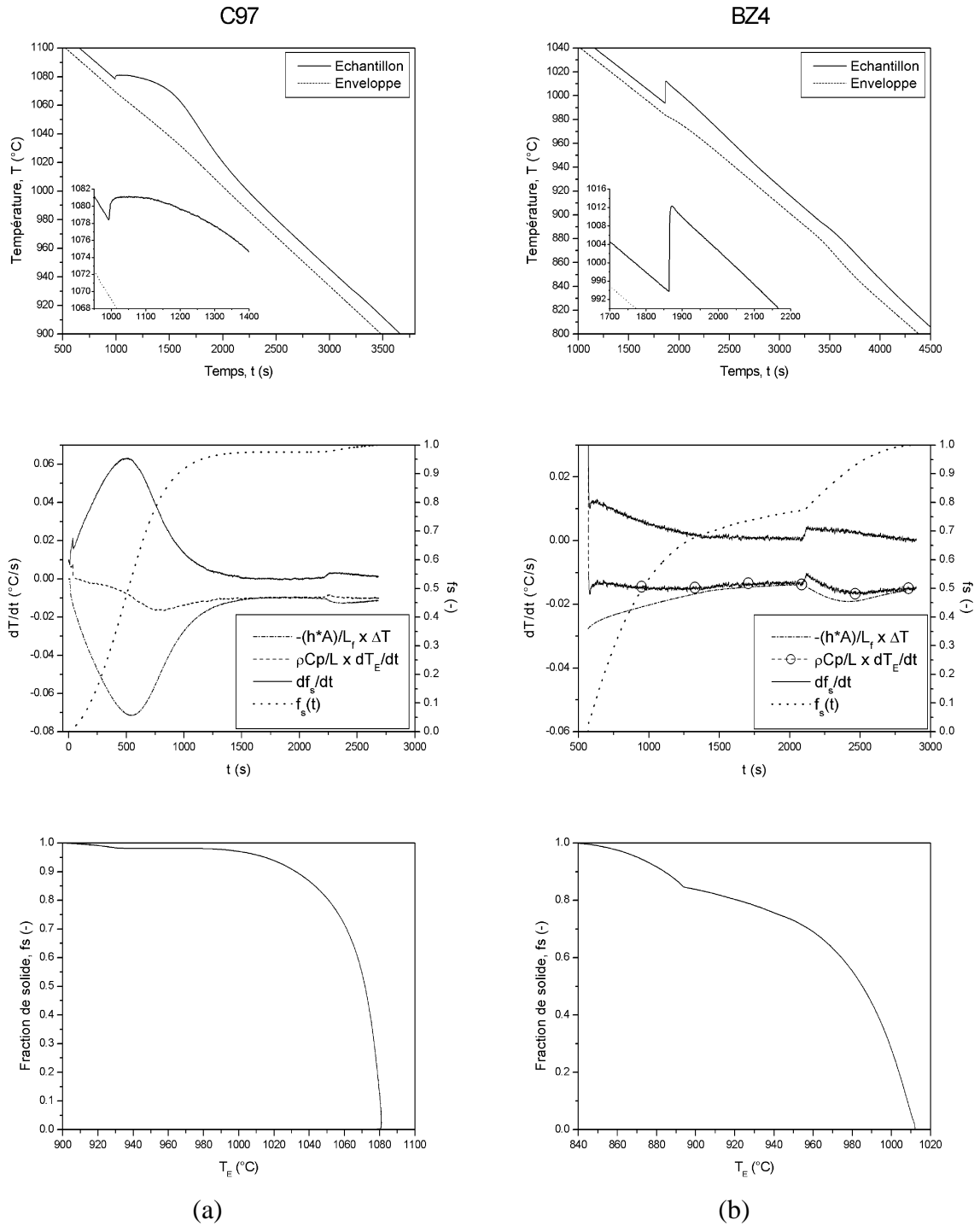


Figure 5.3 : Courbes de refroidissement mesurées en SPTA (haut) et dont les dérivées (milieu) sont utilisées pour calculer la fraction de solide (bas), pour les deux alliages. La méthode de détermination de la fraction de solide en SPTA, présentée sur les graphes du milieu, correspond à la résolution de l'équation (4.8).

Il est important de rappeler qu'à ce stade du calcul, l'évolution de la fraction de solide a été calculée en considérant un coefficient de transfert de chaleur moyen. En effet, il correspond à la valeur moyenne entre le coefficient de transfert de chaleur lorsque l'échantillon est totalement solide, h_{sol} , et celui lorsque l'échantillon est liquide, h_{liq} . Or, on peut considérer que ce

coefficient dépend également de la fraction de solide (formation de lame d'air entre le creuset et l'échantillon, phénomène de radiation, etc...). Par conséquent, l'évolution de la fraction de solide peut être déterminée par une méthode itérative (voir les relations (4.9) et (4.10)). Les courbes obtenues à chaque itération, pour le coefficient de transfert de chaleur et la fraction de solide sont données dans la figure 5.4, pour les deux alliages. Il est à noter que pour déterminer h^* à partir de la relation (4.9), l'aire spécifique A a été calculée pour les deux alliages (A correspond à la surface en contact avec le creuset sur le volume de l'échantillon).

Il a été montré qu'il n'était pas nécessaire d'aller au delà de 2 itérations, les résultats se confondant rapidement. Les valeurs de ces coefficients de transfert de chaleur, sont répertoriés dans le tableau 5.1.

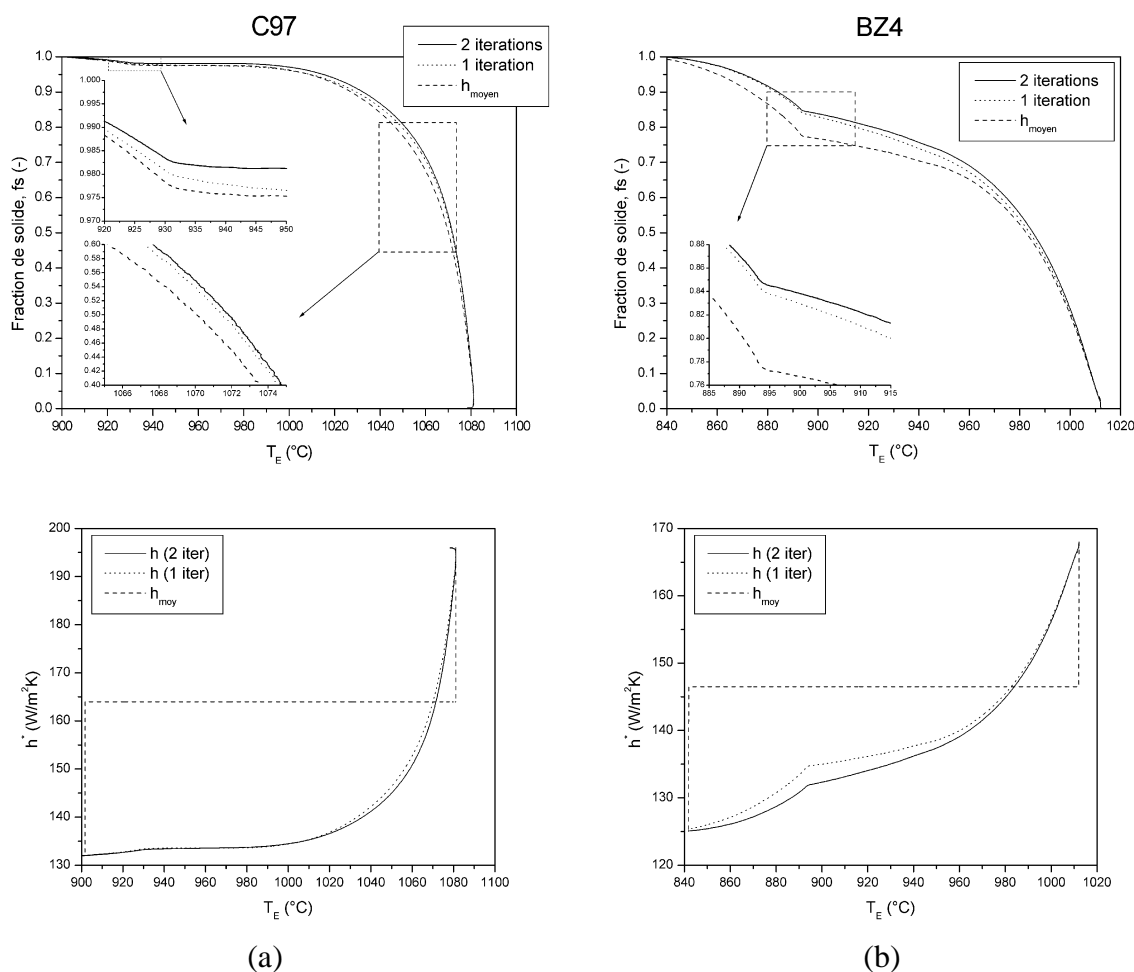


Figure 5.4 : Courbes d'évolution de la fraction de solide avec la température de l'échantillon pour les alliages C97 (a) et BZ4 (b) (haut), calculées à partir du coefficient de transfert chaleur moyen (traitillés), après une itération (pointillés) et après 2 itérations (trait plein) (voir texte). L'évolution des coefficients correspondants est donnée pour chaque itération (bas).

Le chemin de solidification des deux alliages (après deux itérations) a été interprété à partir des résultats SPTA en considérant les diagrammes de phases binaires Cu-(i) (voir en annexes).

La première phase qui se solidifie lors du refroidissement de l'alliage C97 entre la température du liquidus, 1081 °C, et 931 °C, est la phase α -(Cu-Ni) ($f_s = 0.96$). En fin de solidification,

seule la réaction monotectique entre le cuivre et le plomb semble apparaître entre 931 et 901 °C. La précipitation d'un composé Cu_3P (réaction eutectique) semble avoir été masquée par la réaction monotectique.

Due à une plus grande concentration en éléments d'alliages, la phase primaire α -(Cu-Zn-Sn) de l'alliage BZ4 commence à solidifier à 1012 °C, avec une pente plus douce que pour l'alliage C97, et jusqu'à 893 °C. La fraction de solide est alors de 0.85. La réaction monotectique entre le cuivre et le plomb apparaît à une température inférieure à cause de la présence des éléments d'alliage Zn et Sn ($k < 1$) : de 893 à 842 °C. La solidification du composé β -(Cu-Sn) ne semble pas être détectée.

Tableau 5.1: Valeurs des coefficients de transfert de chaleur à l'état liquide, solide et moyennés.

Alliages	h_{liq}	\bar{h}	h_{sol}
C97	196	164	132
BZ4	168	146.5	125

5.1.2. Comparaison des résultats DTA et SPTA

La figure 5.5 montre la comparaison de l'évolution de la fraction de solide obtenue, à partir des résultats DTA, SPTA et du modèle de prédiction de la microségrégation de Scheil-Gulliver, appliqué aux systèmes multicomposés, pour les deux alliages (voir la relation (3.9)). Il est à noter que le modèle de Scheil ne s'applique qu'à la solidification de la phase primaire, ce modèle ne permettant pas de prédire la précipitation des phases secondaires. Les valeurs de $C_{0,i}$, m_i et k_i , déterminées à partir des diagrammes de phase binaires Cu-(i) et utilisées dans le modèle de Scheil, peuvent être consultées dans le tableau 5.3 du paragraphe 5.2.3.

Les différentes valeurs des températures de changement de phase pour les deux alliages sont répertoriées dans le tableau 5.2.

Tableau 5.2: Comparaison des températures de changement de phase, mesurés par SPTA et DTA, et déduits du modèle de Scheil-Gulliver

Alliages		T_L	$T_{secondaire}$	T_S
C97	SPTA	1081	931	901
	DTA	1061	960	946
	Scheil	1081	-	-
BZ4	SPTA	1012	893	842
	DTA	994	946	905
	Scheil	1014	-	-

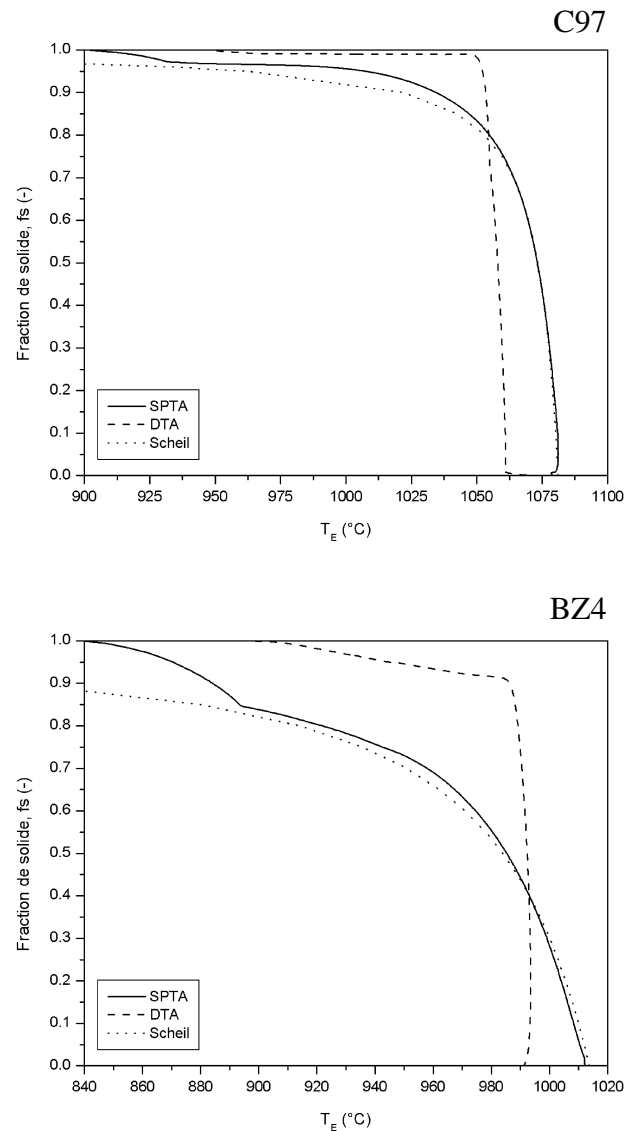


Figure 5.5 : Courbes d'évolution de la fraction de solide déduites des analyses SPTA (lignes pleines), DTA (traitillés) et du modèle de Scheil-Gulliver (pointillés), pour l'alliage C97 (graphe du haut) et l'alliage BZ4 (graphe du bas).

Dans le but d'expliquer les différences de mesures de température entre les analyses DTA et SPTA, quatre phénomènes sont à considérer :

- La surfusion de germination, lors de l'analyse DTA, est importante pour les deux alliages. En considérant le modèle de Scheil comme référence, la surfusion de germination peut être estimée à 20 °C pour les deux alliages. Cette surfusion est principalement due à la petite taille des échantillons. Le nombre de sites de germination hétérogène à disposition est directement proportionnel au volume de l'échantillon, comme le prouve les expériences réalisées par Perepezko sur l'effet de la taille de gouttelettes d'étain [110];

- La résistance thermique du système DTA induit un décalage de la mesure de température. En fait, la température mesurée est celle du thermocouple positionné sous la coupelle et pas celle directement en contact avec l'échantillon;
- La faible intensité des pics secondaires, en DTA, ne permet pas une bonne détection des phases secondaires et de la fin de la solidification;
- La méthode de calcul de la fraction de solide par intégration du pic DTA donne une fausse valeur de la température du solidus. En effet, la fin du pic ne correspond pas à la fin de la réaction.

Les différentes phases qui précipitent au cours des analyses thermiques étant identiques à celles observées lors de la solidification par coulée continue ou par procédé Bridgman, leur caractérisation a été détaillée dans le paragraphe 5.2.2.

A la vue des limitations du système DTA pour déterminer l'évolution de la fraction de solide, seuls les résultats obtenus par SPTA seront pris en compte dans notre étude.

5.2. SOLIDIFICATION DIRIGÉE SANS EMS

Avant toute étude sur l'effet du brassage électromagnétique sur la microstructure des alliages industriels, il est important de caractériser la structure de ces alliages lors d'une coulée standard, c'est-à-dire sans aucun champ magnétique.

5.2.1. Observations

Coulées industrielles

De par le refroidissement effectué sur le bord des fils lors de la solidification par coulée continue, le gradient thermique, G , a des lignes de champ incurvées vers le centre du fil (fig. 5.6). La structure de grains est influencée très directement par le gradient thermique à la position du liquidus (à ne pas confondre avec une carte instantanée du gradient). Il n'en reste pas moins que les grains colonnaires sont orientés dans le sens du gradient thermique présent au sein de la zone pâteuse. Une telle structure est observable sur la figure 5.7, où les macrostructures des alliages BZ4 et C97 sont montrées, pour différentes vitesses de tirage, 100, 200, 300 et 400 mm/min.

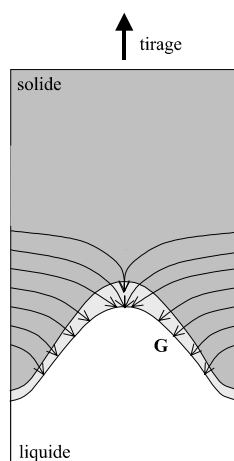


Figure 5.6 : Lignes de gradient thermique G dans un alliage solidifié de manière directionnelle.

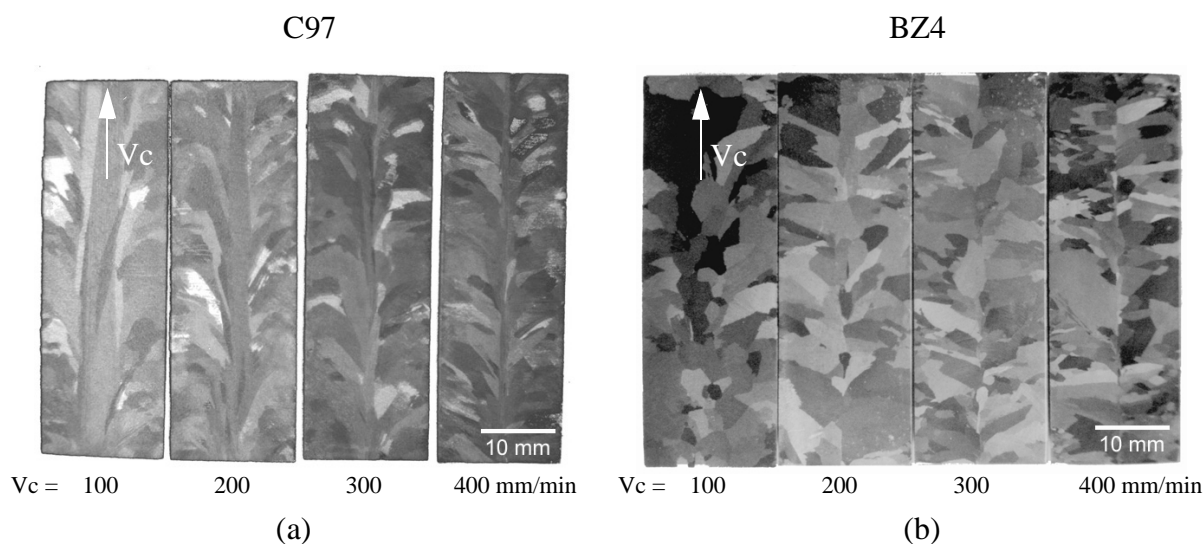


Figure 5.7 : Coupes longitudinales des structures de grains des alliages C97 (a) et BZ4 (b), solidifiés par coulée continue à différentes vitesses de coulée.

La direction de croissance des grains est différente en fonction du type d'alliage. En effet, les grains observés sur les coupes longitudinales de l'alliage C97 (fig. 5.7(a)) sont relativement incurvés vers le centre de l'échantillon, alors que ceux de l'alliage BZ4 semblent croître d'une manière quasiment perpendiculairement à la direction de tirage. Ceci est dû à la morphologie de l'interface et donc à l'orientation du gradient thermique. Dans le cas de l'alliage BZ4, le puits liquide est beaucoup plus profond (sa conductibilité thermique est inférieure à l'alliage C97), le gradient thermique s'oriente donc de façon horizontale.

Ce phénomène s'intensifie avec la vitesse de tirage, la profondeur du puits liquide augmentant avec celle-ci. Au contraire, la diminution de la vitesse de tirage induit un gradient thermique

orienté de manière quasi-verticale (comme dans le cas de la solidification de type Bridgman). Le cas de l'alliage C97 coulé à 100 mm/min illustre bien ce phénomène, la région centrale n'est constituée que d'un ou deux grains.

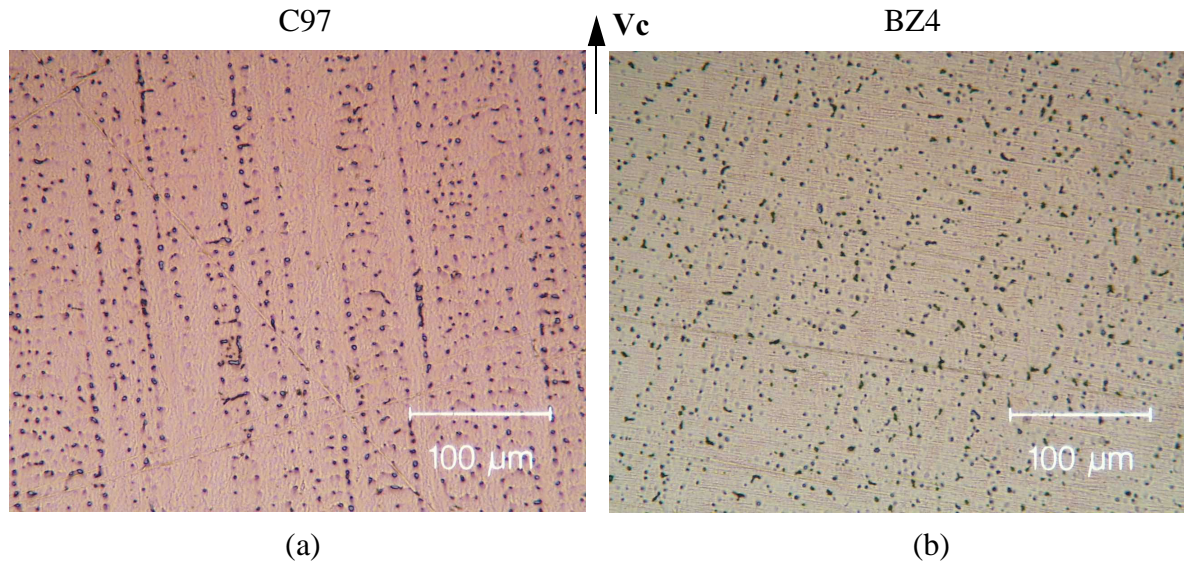


Figure 5.8 : Micrographies optiques d'un grain correspondant aux alliages C97 (a) et BZ4 (b), obtenus par coulée continue industrielle, à une vitesse de coulée de 200 mm/min.

Dans chaque grain, la microstructure observée est de type dendritique colonnaire (fig. 5.8), comme les microstructures obtenues en solidification Bridgman. Cette partie sera donc détaillée dans le paragraphe suivant.

Coulées Bridgman

Le principe de la solidification de type Bridgman est de favoriser la solidification dans une direction imposée. Pour cela, on se doit d'obtenir une interface pratiquement plane, afin, d'une part, de connaître parfaitement la vitesse de solidification, et, d'autre part, d'orienter toutes les dendrites dans la même direction. La vitesse de tirage, V_c , doit donc être relativement faible (figure 5.9). Dans ce cas, les structures obtenues sont de type colonnaires orientées dans le sens du gradient de température. Pour étudier nos alliages, nous avons donc choisi une vitesse de tirage faible (de descente dans le four, dans le cas de la solidification Bridgman), mais assez élevée pour conserver la structure dendritique. Elle est de l'ordre de $6 \cdot 10^{-5}$ m/s. Dans un cas stationnaire et pour lequel les isothermes sont perpendiculaires à la vitesse de tirage, la vitesse de croissance peut être considérée équivalente à la vitesse de tirage. Il est alors possible, à l'aide du modèle KGT adapté aux systèmes multicomposés (chapitre 3), de vérifier qu'à la vitesse de tirage utilisée, la structure est colonnaire dendritique (fig. 5.10). Les différentes données utilisées dans ce modèle sont identiques à celles utilisées pour le calcul de l'espacement de bras de dendrite secondaire (voir paragraphe 5.2.3).

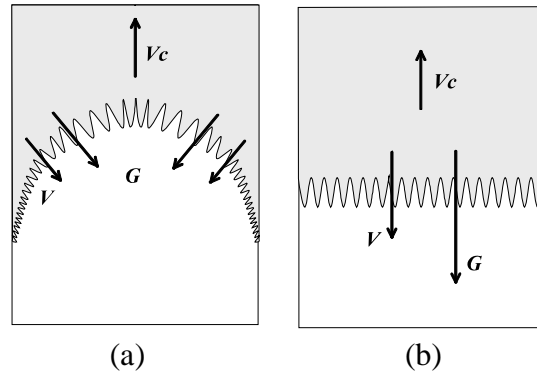


Figure 5.9 : Représentation des morphologies d'interface à deux vitesses de tirage différentes. La partie claire représente le liquide et la partie grise, le métal solide. La vitesse en (a), qui correspondrait à une vitesse de tirage de coulée continue, est nettement plus élevée que dans le cas (b), solidification de type Bridgman. G est le gradient thermique à l'interface, V correspond à la vitesse de solidification et V_c est la vitesse de tirage.

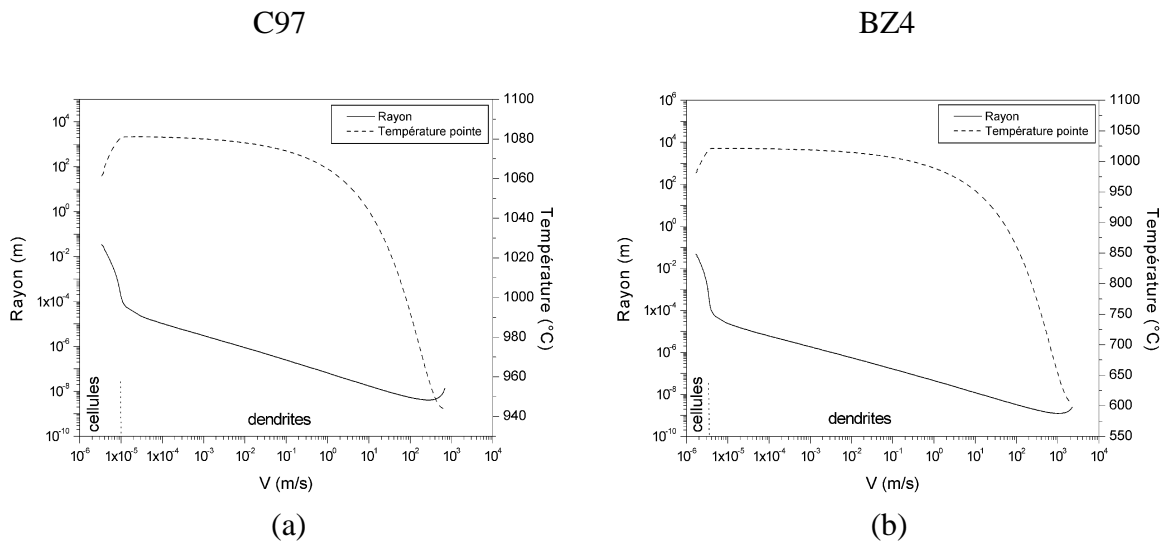


Figure 5.10 : Courbes d'évolution du rayon et de la température de la pointe de la dendrite avec la vitesse de croissance, calculées à l'aide du modèle KGT, pour les alliages C97 (a) et BZ4(b). Les valeurs de $C_{0,i}$, m_i et k_i , déterminées à partir des diagrammes de phase binaires Cu-(i) et utilisées dans le modèle KGT, sont données dans le tableau 5.3 du paragraphe 5.2.3. Le coefficient de diffusion dans le liquide a été choisi égal et constant pour tous les éléments d'alliage ($D_l = 1.3 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ [84]).

L'observation des structures solidifiées a été réalisée sur des coupes longitudinales des deux alliages. La figure 5.11 montre les structures de grains obtenues en solidification directionnelle, les grains sont orientés quasiment dans la même direction.

Dans le cas de l'alliage C97, une microstructure dendritique correspondant à la phase α (solution solide Cu-Ni) est observée, ainsi qu'une phase interdendritique grise eutectique (figure 5.11 (a) et (b)). L'alliage BZ4 présente également une structure dendritique. Les figures 5.11 (c)

et (d) montrent des dendrites constituées de la phase α -(Cu-Sn-Zn), et une phase eutectique plus sombres localisée aux régions interdendritiques. L'analyse chimique de ces phases interdendritiques est faite à la section suivante.

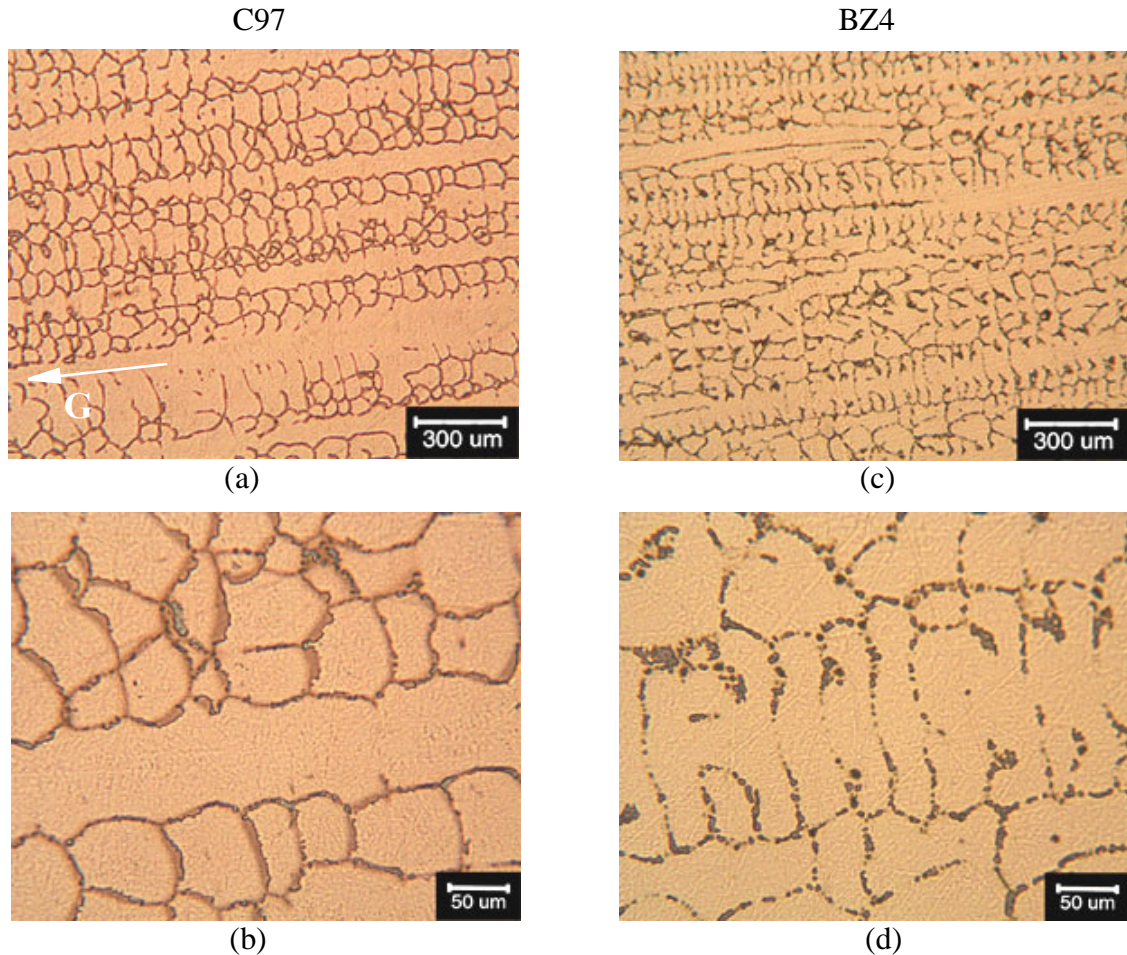


Figure 5.11 : Images obtenues au microscope optique (MO) des microstructures dendritiques colonnaires observées sur des coupes longitudinales d'échantillon d'alliages C97 (a), (b) et BZ4 (c), (d), solidifiés par procédé Bridgman, à 4 mm/min. La ségrégation localisée aux zones interdendritiques est mise en évidence par la présence de phases eutectiques de couleur gris foncé.

5.2.2. Microségrégation interdendritique

L'observation des régions interdendritiques a été réalisée au microscope électronique à balayage (MEB) Philips XL-F 30 à effet de champ (émission d'électrons par l'action d'un champ électrique intense sur du tungstène). L'observation des alliages solidifiés a révélé une ségrégation interdendritique marquée : elle est due à l'enrichissement du liquide en éléments de soluté au cours de la solidification. Les images obtenues pour le C97 et le BZ4, solidifiés directionnellement et par coulée continue, correspondent aux figures 5.12. La matrice α est représentée en gris alors que les gouttelettes de plomb apparaissent en blanc. Pour les autres phases, une microanalyse chimique par spectrométrie des rayons X (Energy Dispersive X-ray Spectrometer, EDX

ou EDS) nous a permis de déterminer les concentrations des différents éléments d'alliages. Le tableau 5.3 regroupe les moyennes des valeurs de concentration en éléments qui ont été mesurées en un point donné de la région interdendritique. Plus explicitement, les concentrations mesurées dans chaque phase (voir figure 5.12) ont été utilisées pour déterminer la taille de la microstructure (voir la partie suivante) et pour identifier les phases qui ont précipité dans ces régions. Les valeurs mesurées ont alors été moyennées sur trois différentes régions interdendritiques de même type, des alliages C97 et BZ4, solidifiés directionnellement et par coulée continue.

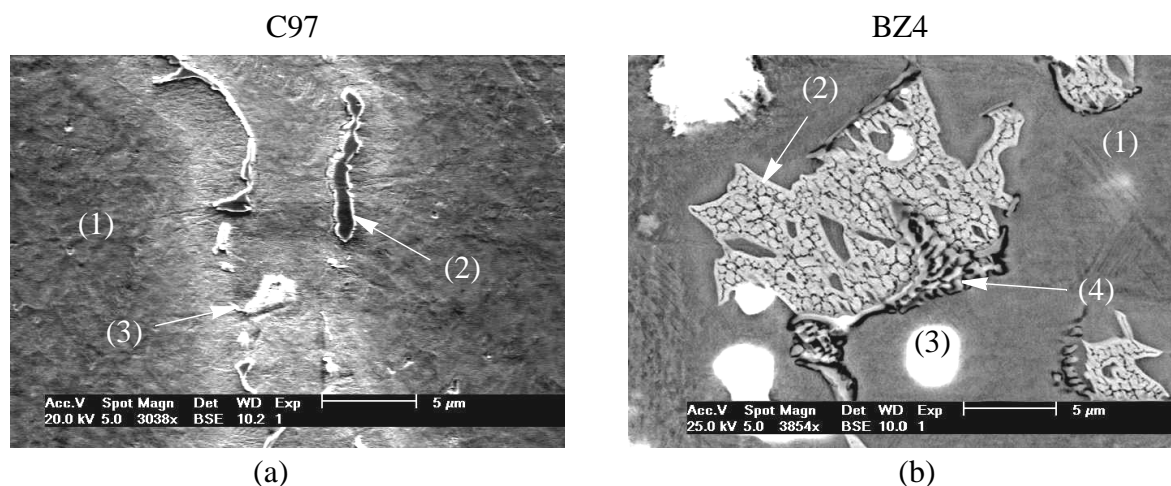


Figure 5.12 : Photographies de microscopie électronique (en mode électrons rétrodiffusés (BSE)) des régions interdendritiques des alliages C97 (a) et BZ4 (b). Le contraste chimique entre les éléments est mis en évidence : les couleurs claires correspondent à des éléments dont le numéro atomique est élevé.

Dans le cas de l'alliage C97, les différentes phases en présence dans la région interdendritique sont assez difficiles à analyser. En effet, on peut voir sur la figure 5.12(a) que la phase notée (2) a une largeur d'environ $1.5 \mu\text{m}$. Or, la résolution spatiale d'une analyse EDX est de $1 \mu\text{m}^3$. Il est alors possible d'analyser en même temps une proportion de la phase à côté ou en dessous (les rayons X sont pénétrants) de celle considérée. C'est pourquoi, l'EDX n'est pas vraiment précise dans le cas de l'alliage C97. En tenant compte de ces phénomènes, on peut interpréter les résultats obtenus comme suit :

- (1) : α -(Cu-Ni)
- (2) : Cu_3P et probablement Ni_xP_y (réaction eutectique)
- (3) : globule de Pb

Dans le cas de l'alliage BZ4, une phase lamellaire eutectique, Cu_3P , est observée malgré l'absence de phosphore dans la composition initiale. En fait, le phosphore est présent sous forme de traces dans l'alliage. La structure quasi-globulaire correspond à la phase β -(Cu-Sn) qui se transforme au cours de la solidification en phase $(\alpha + \gamma)$ puis en $(\alpha + \delta)$ (réaction eutectoïde). En fin de solidification, le plomb précipite sous forme de gouttelettes (réaction monotectique). En résumé, les phases en présence sont :

- (1) : α -(Cu-Sn-Zn)
- (2) : β -(Cu-Sn), phase métastable qui se transforme en phase eutectoïde $(\alpha + \delta)$

(3) : Pb

(4) : Cu₃P

On notera une grande propension à la ségrégation du phosphore et de l'étain dans le cas des alliages C97 et BZ4, respectivement. Remarquons également la ségrégation négative du nickel, qui s'explique par un coefficient de partage supérieur à 1. Enfin, il faut préciser que la nature des phases ségrégées ne change pas de manière significative pour des échantillons obtenus par solidification Bridgman ou par coulée continue.

5.2.3. Mesures et prédiction de la taille de la microstructure

Dans cette partie, les grandeurs qui seront utilisées pour caractériser la microstructure des alliages sont principalement les espacements de troncs primaires (λ_1) et de bras secondaires de dendrites (λ_2). Nous considérerons la morphologie et la taille des grains dans la section suivante.

La taille de la microstructure dépend essentiellement des conditions de coulée et de la maturation des dendrites. Il a été vu au chapitre 2, que λ_1 est uniquement fonction des conditions de coulée (gradient thermique et vitesse de solidification), mais varie relativement peu (loi en $(VG^2)^{-1/4}$, voir la relation (2.12)) : cet espacement est voisin de 100 μm pour les deux alliages en coulée continue et en solidification Bridgman. Dans ce cas, λ_2 sera considéré comme le facteur déterminant, qui caractérise la taille de la microstructure.

Les expériences de coulée continue et de solidification Bridgman ont été réalisées à des vitesses de coulée (de descente de l'échantillon pour le procédé Bridgman) comprises entre 4 et 400 mm/min. On peut alors mesurer les espacements secondaires des bras de dendrites, en fonction de la vitesse de solidification, pour un gradient thermique donné ($G = 4000$ et 7000 K/m pour le procédé Bridgman et la coulée continue, respectivement). Les résultats de ces mesures sont reportés dans le tableau 5.4. Afin d'obtenir des valeurs représentatives de la microstructure dendritique, les mesures ont été réalisées sur des bras secondaires proches des troncs primaires. On peut observer une diminution de λ_2 lors d'une augmentation de la vitesse de solidification. Comme exemple, les figures 5.13 (a) et (b) montrent des images réalisées au microscope optique de l'alliage C97 coulé industriellement. On voit clairement l'affinage de la microstructure avec l'augmentation de la vitesse de coulée.

Il est également important de noter que l'alliage BZ4, à vitesse équivalente, a une microstructure plus fine que le C97, ce qui peut être expliqué par le fait qu'il est plus allié.

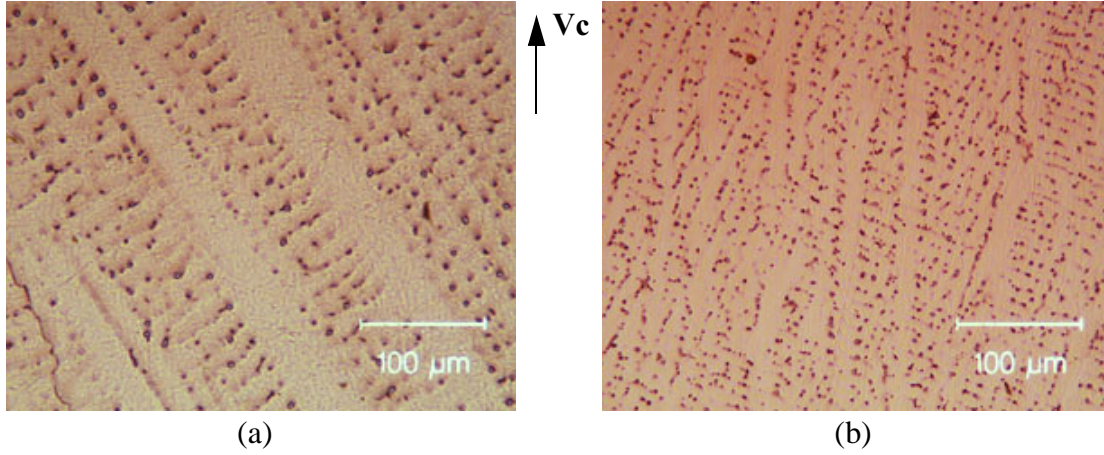


Figure 5.13 : Images MO de coupes longitudinales de l'alliage C97, coulé en continu à 100 mm/min (a) et à 400 mm/min (b).

Dans le but de prédire l'évolution de l'espacement secondaire des bras de dendrite avec la vitesse de refroidissement, les relations (3.3), (3.4) et (3.5), définies au chapitre 3, ont été employées. Les différentes valeurs utilisées dans ce modèle, déduites des diagrammes de phase binaires Cu-(i), sont répertoriées dans le tableau 5.3. Rappelons simplement que les valeurs des concentrations, $C_{l,i}$, sont des valeurs moyennes correspondantes aux concentrations mesurées, par EDX, des phases eutectiques. C'est à dire que, par exemple, les 28% d'étain, ont été mesurés dans la phase notée (2) de la figure 5.12(b).

Par simplification, le coefficient de diffusion dans le liquide a été considéré égal et constant pour l'ensemble des éléments d'alliages i . La valeur choisie correspond au coefficient de diffusion du plomb dans du cuivre liquide (à 1100 °C), $D_l = 1.3 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ [84]. De son côté, le coefficient de Gibbs-Thomson a été estimé grâce à la relation (3.6), $\Gamma = 2.5 \cdot 10^{-7} \text{ mK}$. Les différentes valeurs utilisées pour ce calcul sont : l'énergie interfaciale entre le solide et le liquide du cuivre dans un alliage Cu-Ni utilisée par Warren [111] est de $\sigma_{Cu} = 2.9 \cdot 10^{-1} \text{ J/m}^2$; et l'entropie de fusion du cuivre pur, $\Delta S_f = 1.2 \cdot 10^6 \text{ J/m}^3\text{K}$ [18]. L'évolution de λ_2 avec la vitesse de refroidissement (équation (3.3)), devient alors pour chaque alliage :

$$\lambda_2(\text{C97}) = 40.469(\dot{T})^{-1/3} \quad (5.1)$$

$$\lambda_2(\text{BZ4}) = 36.609(\dot{T})^{-1/3} \quad (5.2)$$

La comparaison entre les mesures expérimentales et les calculs, est présentée sur la figure 5.14. La tendance expérimentale observée est donc en accord avec le modèle de Rappaz et Boettinger. En effet, λ_2 diminue avec la vitesse de refroidissement et la concentration en éléments d'alliage.

Tableau 5.3: Données utilisées pour le calcul de prédiction de l'espacement secondaire de bras de dendrite, pour les alliages solidifiés par procédé Bridgman et par coulée continue. Le phosphore contenu dans l'alliage BZ4 a été négligé, car sa composition initiale est inconnue.

Alliage	Élément	$C_{0,i}$ (% pds)	$C_{l,i}$ (% pds) Bridgman	$C_{l,i}$ (% pds) Coulée cont.	k_i	m_i (K/%)
C97	Ni	1	0.8	0.8	1.45	5.76
	Pb	1	10	10	0.027	-8.38
	P	0.2	18	16	0.067	-20.99
BZ4	Sn	4	28	10	0.286	-9.47
	Zn	4	6	4	0.87	-5.22
	Pb	4	6	6	0.027	-14.97

Tableau 5.4: Espacements secondaires des bras de dendrites mesurés (à $\pm 2 \mu\text{m}$) et calculés en fonction de la vitesse de tirage.

Alliage	λ_2 (μm)	V_c (mm/min)						
		Bridgman			Coulée continue			
		4	8	60	100	200	300	400
C97	mesuré	70	55	25	21	15	12	11
	calculé	64	50.9	26	18.6	14.8	12.9	11.7
BZ4	mesuré	43	39	22	17	13	11	9.5
	calculé	56.9	45.2	23	16.1	12.8	11.2	10.2

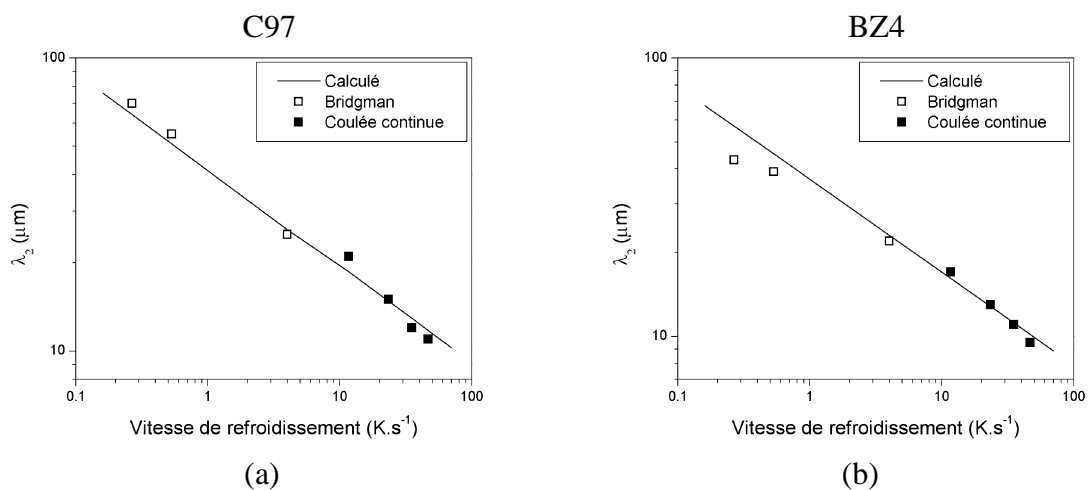


Figure 5.14 : Comparaison des valeurs de λ_2 , mesurées expérimentalement et calculées, pour l'alliage C97 (a) et BZ4 (b).

5.2.4. Orientation des grains

Résultats

Les sections longitudinales des échantillons obtenus par coulée continue et par solidification Bridgman, ont été étudiées par EBSD dans le but de déterminer l'orientation cristallographique de la croissance des grains par rapport au procédé de solidification. Les figures 5.15 et 5.16 montrent les structures de grains reconstruites à partir des résultats obtenus par EBSD, pour les alliages solidifiés par coulée continue sans brassage et par procédé Bridgman, respectivement. Les couleurs correspondent à la désorientation des troncs primaires de dendrites $\langle 100 \rangle$, constituant chaque grain, par rapport à l'axe longitudinal des échantillons (noté X0). Les mêmes couleurs sont utilisées pour tracer les figures de pôle $\langle 100 \rangle$. Remarquons que dans le cas des figures de pôle correspondant à la densité d'orientation (fig. 5.16), les couleurs utilisées sont différentes (voir échelles sur les figures).

Les échantillons produits par coulée continue montrent une structure de grain typique qui correspond à la rencontre, localisée au centre du fil, de deux différents types de grains, orientés dans le gradient thermique à l'interface (fig. 5.15). Chaque grain, de part et d'autre de ce défaut central, est orienté plus ou moins dans la même direction, c'est à dire à $\pm 10^\circ$. On peut également remarquer, dans le cas de l'alliage C97, que quelques grains, localisés au centre de l'échantillon, sont orientés parallèlement à X0. Le cas de l'alliage BZ4 est plus difficile à interpréter puisque la qualité de la carte n'est pas optimale (écrouissage de surface). Le taux d'indexation est alors nettement moins élevé que dans le cas de l'alliage C97, passant de 91% à 76%. Certains grains apparaissent majoritairement en noir, signifiant que l'indexation n'a pas pu se faire. Il est cependant raisonnable de penser que l'orientation des quelques points appartenant à ces grains non-indexés, peuvent être considérés comme étant l'orientation du grain lui-même. La tendance observée sur l'alliage BZ4 est donc similaire à celle observée sur l'alliage C97, à savoir que les grains se rejoignent au centre de l'échantillon. Il faut toutefois remarquer que les grains de l'alliage BZ4 ont tendance à croître globalement de manière plus radiale que ceux de l'alliage C97. Comme l'ont montré Rappaz et Gandin [112], ce changement d'orientation est lié au gradient thermique, et donc à la forme de l'isotherme liquidus. Dans le cas de l'alliage BZ4, la conductibilité thermique étant inférieure à celle du C97 (moins allié), le puits liquide est plus allongé et donc le gradient plus radial.

Les échantillons Bridgman ont une structure colonnaire alignée dans la direction du gradient thermique, c'est à dire, plus ou moins parallèle à la direction X0 (fig. 5.16). Les figures de pôle $\langle 100 \rangle$ montrent que la majorité des grains est orientée autour de cette direction, pour les deux alliages. La direction $\langle 100 \rangle$ est donc parallèle au gradient thermique. Plus précisément, les courbes de densité d'orientation (texture) indiquent que l'orientation des grains est centrée sur une direction désorientée de 15° par rapport à la direction X0 (à $\pm 5^\circ$), dans le cas de l'alliage C97, et désorientée d'environ 7° (à $\pm 5^\circ$), dans le cas de l'alliage BZ4. Remarquons que, pour l'alliage BZ4, quelques grains équiaxes apparaissent sur les bords des échantillons. Ils sont dus à la présence de nombreux sites de germination induits par la rugosité du creuset contenant les échantillons, et également, par l'évaporation du zinc au cours de la solidification.

Notons que le phénomène de sélection de grain est observable sur ces cartes. En effet, les grains pour lesquels la direction $\langle 100 \rangle$ est orientée parallèlement au gradient thermique (couleurs bleues sur les cartes d'orientation) sont favorisés.

Cette différence d'orientation des grains entre les échantillons solidifiés par coulée continue et procédé Bridgman, s'explique par l'orientation du gradient thermique au voisinage du liquide. Comme il a été montré sur la figure 5.9, l'orientation du gradient thermique détermine l'orientation des troncs primaires de dendrites. Ce qui justifie les structures directionnelles orientées en X_0 , au cours de la solidification Bridgman et les structures présentant une jointure centrale des grains, pour les échantillons coulés industriellement.

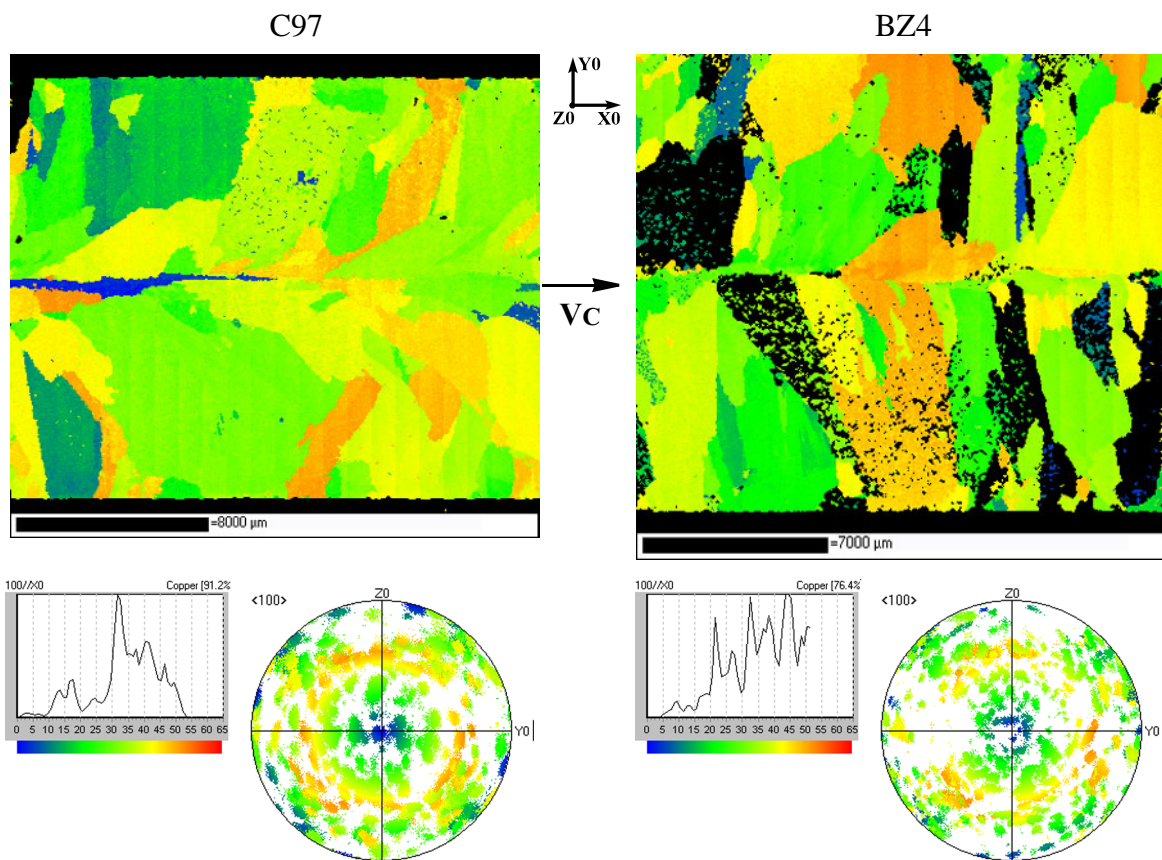


Figure 5.15 : Cartes d'orientation et figures de pôle $\langle 100 \rangle$ obtenues par analyse EBSD, pour les deux alliages coulés industriellement sans brassage électromagnétique. La couleur des grains est fixée par l'angle θ entre l'axe X_0 (axe du barreau) et la direction $\langle 100 \rangle$ la plus proche. $V_c = 400 \text{ mm/min}$.

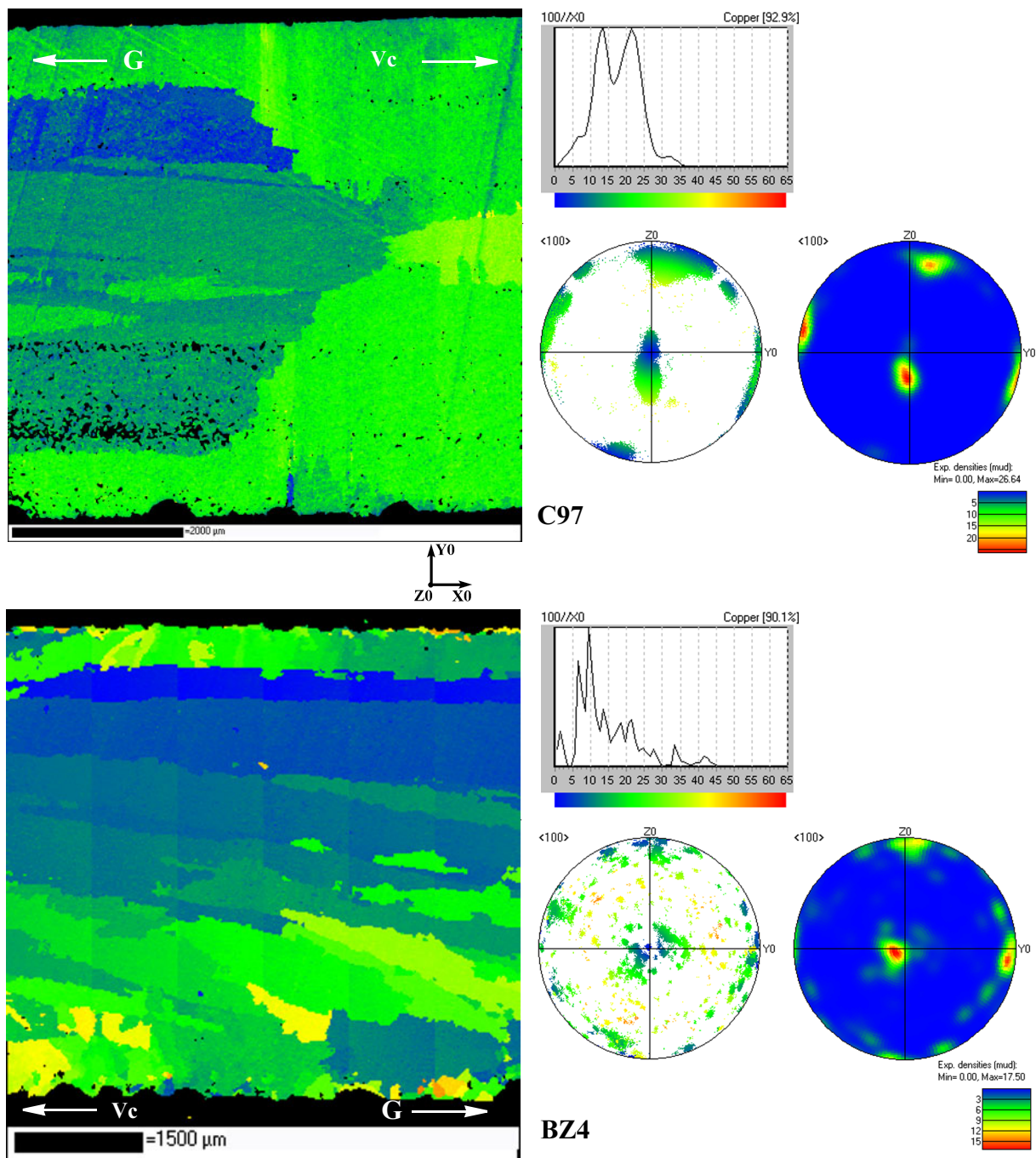


Figure 5.16 : Cartes d'orientation et figures de pôle $\langle 100 \rangle$ obtenues par analyse EBSD, pour les deux alliages solidifiés par procédé Bridgman, sans brassage électromagnétique. L'orientation des grains est déterminée par rapport à l'axe X_0 . Les figures de pôles dont la couleur dominante est "bleue" correspondent à la densité des grains ayant une orientation particulière. $V_c = 4$ mm/min.

5.3. SOLIDIFICATION DIRIGÉE AVEC EMS

L'effet du brassage électromagnétique sur la structure des alliages C97 et BZ4 est étudié dans cette partie. Après la présentation des structures équiaxes obtenues sous champ magnétique lors de la solidification des alliages, les investigations expérimentales seront axées sur la détermination des textures de coulée par EBSD et sur l'étude de l'effet des divers paramètres de coulée.

5.3.1. Affinage des grains

Coulées industrielles

Comme il a été vu au chapitre 2, les forces de Lorentz, localisées dans la partie liquide de l'alliage, créent des vortex de convection au voisinage de l'interface solide-liquide (fig. 5.17). L'apport de liquide chaud depuis le puits liquide ou de liquide riche en soluté (pour $k < 1$) depuis le fond de la zone pâteuse peut provoquer la refonte des bras secondaires et créer des fragments. Emportés par la convection, ces fragments, sous certaines conditions, peuvent donner naissance à des grains équiaxes.

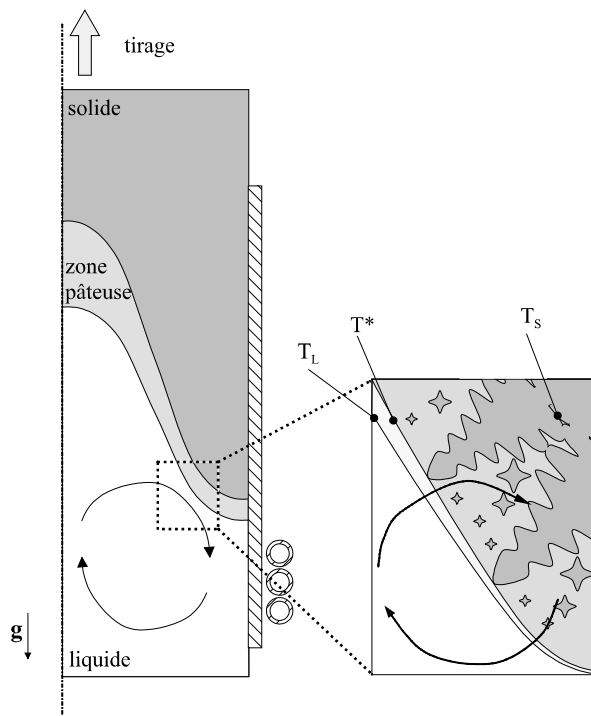


Figure 5.17 : Représentation schématique du procédé de brassage électromagnétique lors de la coulée continue.

La vitesse de coulée est de 400 mm/min, la puissance d'induction a été fixée entre 6 et 8 kW avec une fréquence élevée. Les échantillons, appelés "fils", ont un diamètre de 18 mm. Dans le cas que nous allons étudier, les structures affinées ont été observées pour les deux alliages C97 et BZ4. L'effet des paramètres de coulée sera étudié dans une partie ultérieure.

L'affinage de la structure est illustrée sur la figure 5.18. La taille des grains diminue fortement, passant de grains allongés, de dimension égale à 5 mm x 3 mm, à des grains équiaxes d'environ 300 μm de diamètre. Cette réduction de la taille de la structure et ce mode de croissance équiaxe éliminent le défaut de centre, ce dernier étant créé par la jointure des grains colonnaires. Cette structure affinée est donc beaucoup plus homogène du point de vue des propriétés physiques des alliages, mais aussi du point de vue des propriétés mécaniques.

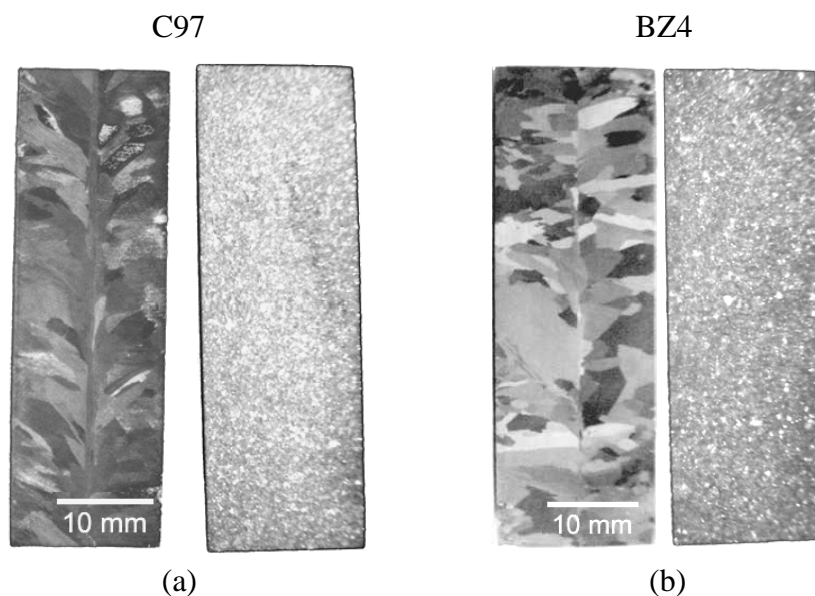


Figure 5.18 : Photographies des macrostructures des alliages C97 (a) et BZ4 (b) sans et avec brassage EMS, pour une vitesse de coulée de 400 mm/min.

La microstructure équiaxe est observée sur la figure 5.19, pour les deux alliages. Les dendrites équiaxes forment, chacune, un grain. L'espacement des bras secondaires, dans le cas de l'alliage coulé avec brassage, varie énormément au sein d'un même échantillon (entre 7 et 25 μm), une taille représentative de la microstructure obtenue après brassage ne peut donc pas être déterminée. Cette variation des λ_2 est due aux conditions de croissance très différentes de chaque grain équiaxe. Ces conditions sont dépendantes du parcours du grain, s'il est refondu, s'il est emporté par la convection ou s'il est piégé rapidement par la partie solide.

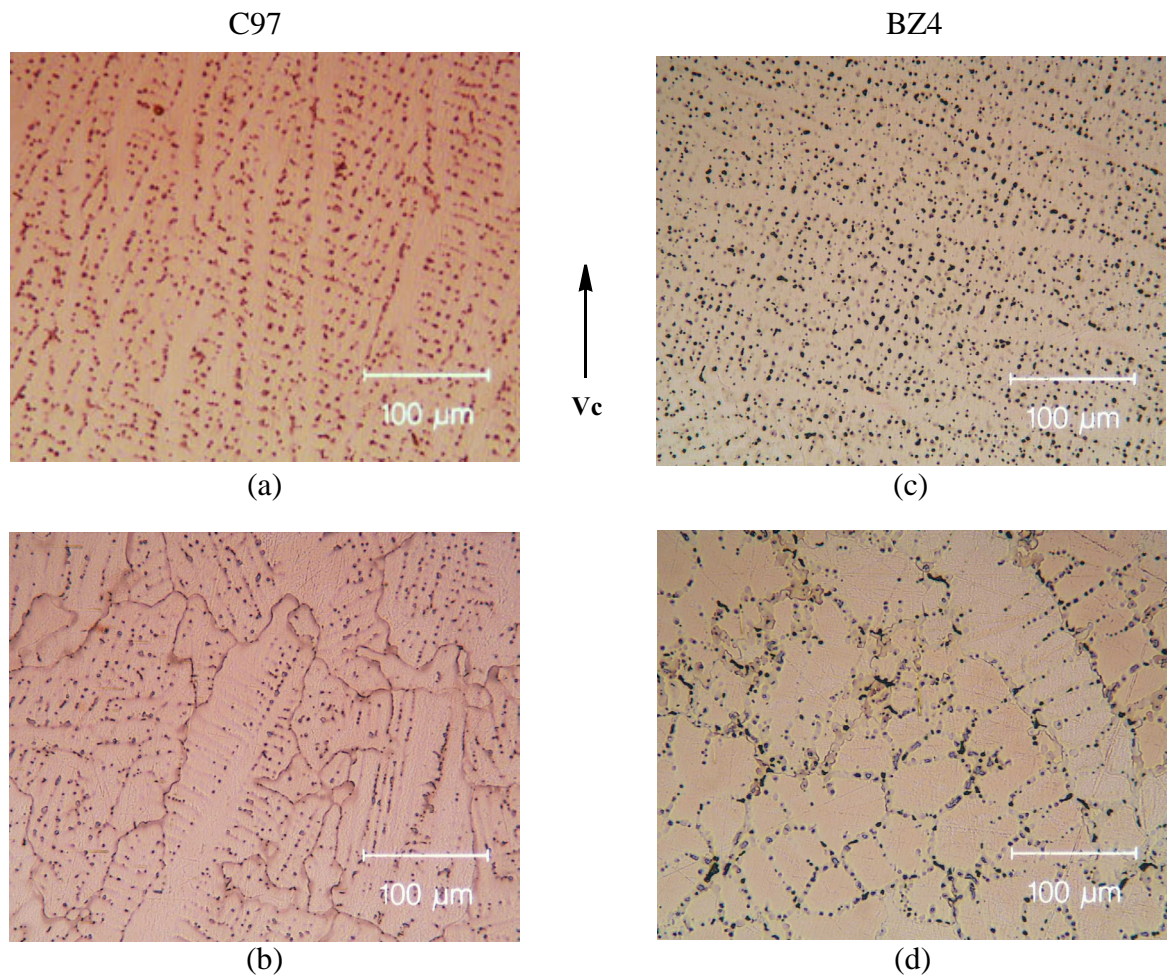


Figure 5.19 : Micrographies optiques montrant l'effet du brassage électromagnétique sur la microstructure obtenue en coulée continue, à 400 mm/min. Les figures correspondent à la microstructure de l'alliage C97 sans (a) et avec brassage (b). Il en est de même pour l'alliage BZ4 (c) et (d).

Solidification Bridgman

La configuration de la solidification orientée par procédé Bridgman est beaucoup plus simple que pour la coulée continue industrielle. En effet, nous avons vu, dans les chapitres précédents, que l'isotherme liquidus est généralement plane, en solidification Bridgman. C'est dans ce but simplificateur, que cette technique a été employée pour étudier les effets du brassage électromagnétique. Les conditions expérimentales ont été choisies identiques pour les deux alliages:

- vitesse de tirage, $V_c = 4$ mm/min;
- le gradient thermique, $G = 4000$ K/m (four à vide);
- diamètre de l'échantillon égal à 11 mm;
- température maximale du liquide, dans la partie la plus chaude du four Bridgman, fixée à 1210 °C pour être sûr que tout l'échantillon est liquide, avant de commencer la solidification;
- position de l'inducteur proche de l'interface (sera notée (2) dans les parties suivantes);

- la puissance d'induction fixée à 30% de la puissance totale du générateur (5.8 kW).

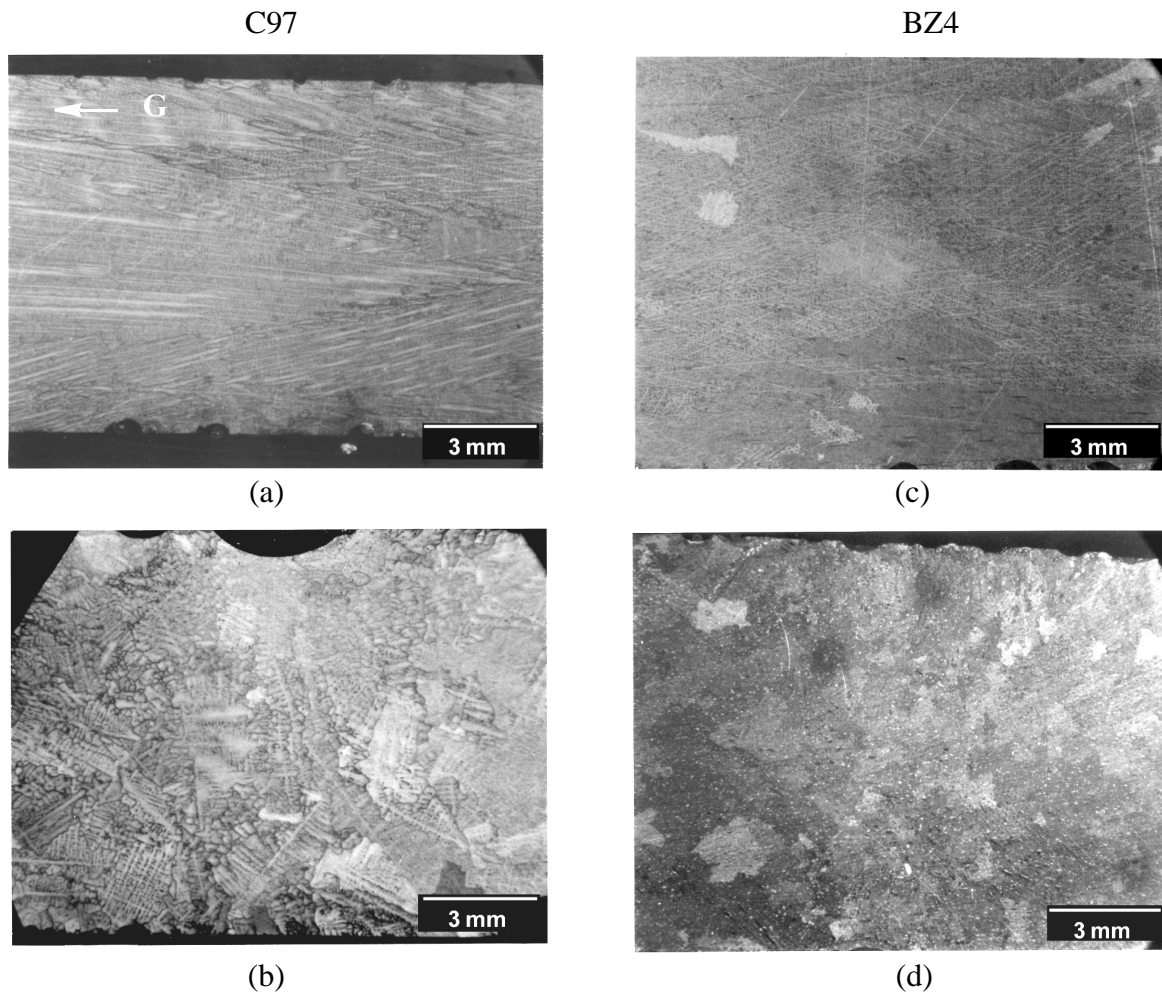


Figure 5.20 : Comparaison des structures de l'alliage C97 sans (a) et avec EMS (b), ainsi que de l'alliage BZ4 sans (c) et avec EMS (d), solidifiés par procédé Bridgman.

Dans de telles conditions, la figure 5.20 montre que l'affinage des grains est le plus efficace pour l'alliage BZ4. La taille des grains équiaxes ainsi obtenus est inférieure à 1.5 mm de diamètre, alors que pour l'alliage C97, les grains obtenus sont supérieurs à 2 mm de diamètre. Il semble donc que l'alliage C97 soit plus difficile à affiner que l'alliage BZ4.

5.3.2. Orientation des grains

L'orientation des grains affinés, correspondant aux échantillons observés précédemment, a été étudiée par EBSD. Les cartes d'orientation et les figures de pôles correspondantes ont été déterminées sur des portions d'échantillon, dans le cas des échantillons coulés industriellement, pour limiter le temps d'acquisition. En effet, de par la taille des grains, la résolution des mesures EBSD a été fixée à 20 μm et une carte réalisée sur l'ensemble du diamètre prendrait donc beaucoup trop de temps. Or, ces échantillons industriels affinés sont homogènes, par conséquent seu-

les des portions de l'échantillon ont été analysées. On peut donc extrapoler en considérant que les orientations déterminées par EBSD s'appliquent sur l'ensemble des régions brassées. Dans le cas des échantillons Bridgman, les analyses ont été réalisées sur l'ensemble du diamètre de l'échantillon, en choisissant une zone représentative de la structure de l'échantillon.

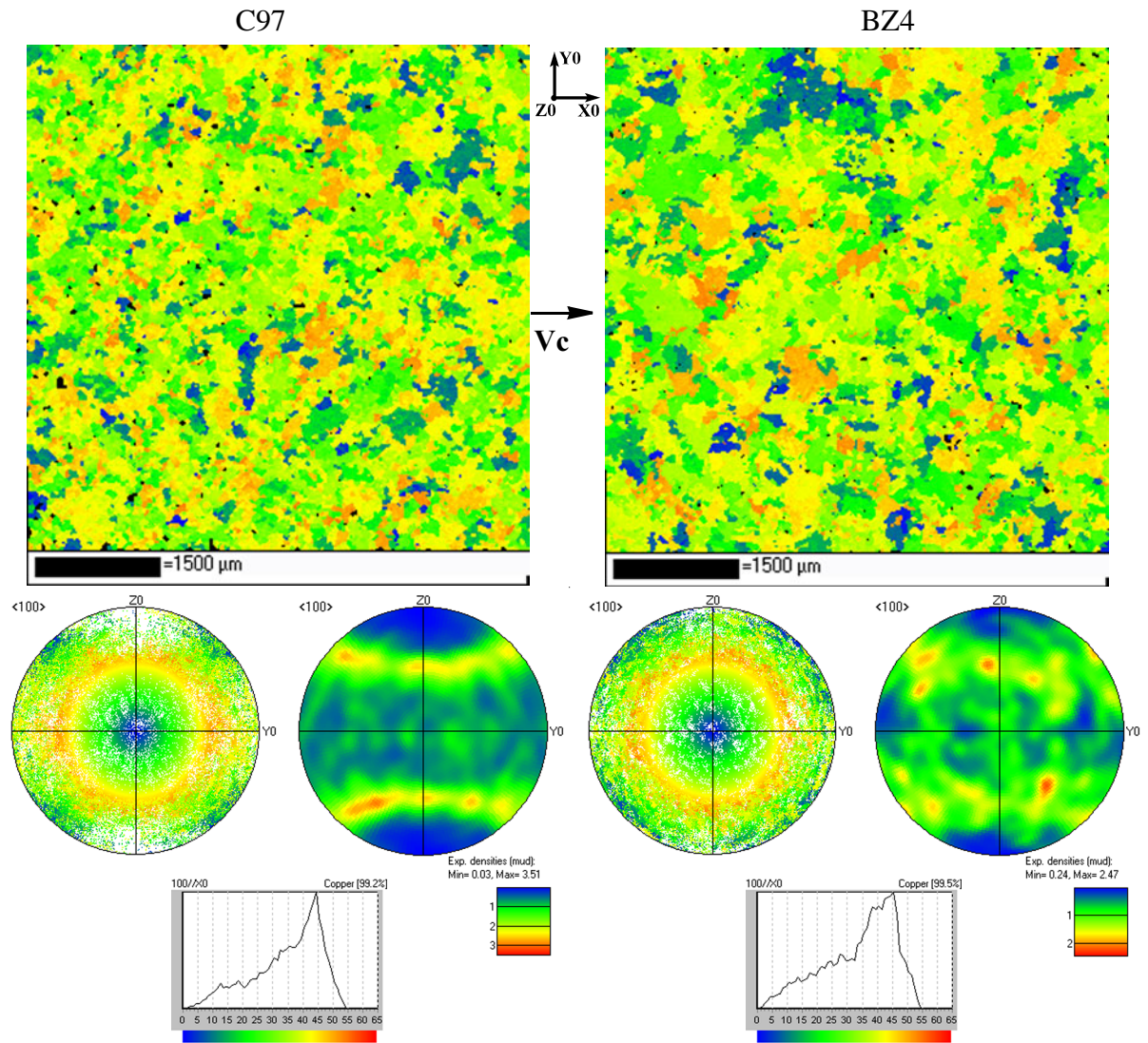


Figure 5.21 : Cartes d'orientation et figures de pôle $\langle 100 \rangle$ obtenues par analyse EBSD, pour les deux alliages coulés industriellement avec brassage électromagnétique. L'orientation des grains est déterminée par rapport à l'axe X_0 . $V_c = 400$ mm/min.

Les structures de grains des alliages obtenus par coulée continue et par solidification Bridgman avec brassage électromagnétique sont données par les figures 5.21 et 5.22, respectivement. Chaque couleur est fixée par l'angle entre la direction X_0 du barreau et la direction $\langle 100 \rangle$ la plus proche. Rappelons que les échantillons analysés par EBSD (figures 5.21 et 5.22), sont identiques à ceux observés précédemment (figure 5.18 pour les échantillons industriels et 5.20 pour les échantillons Bridgman).

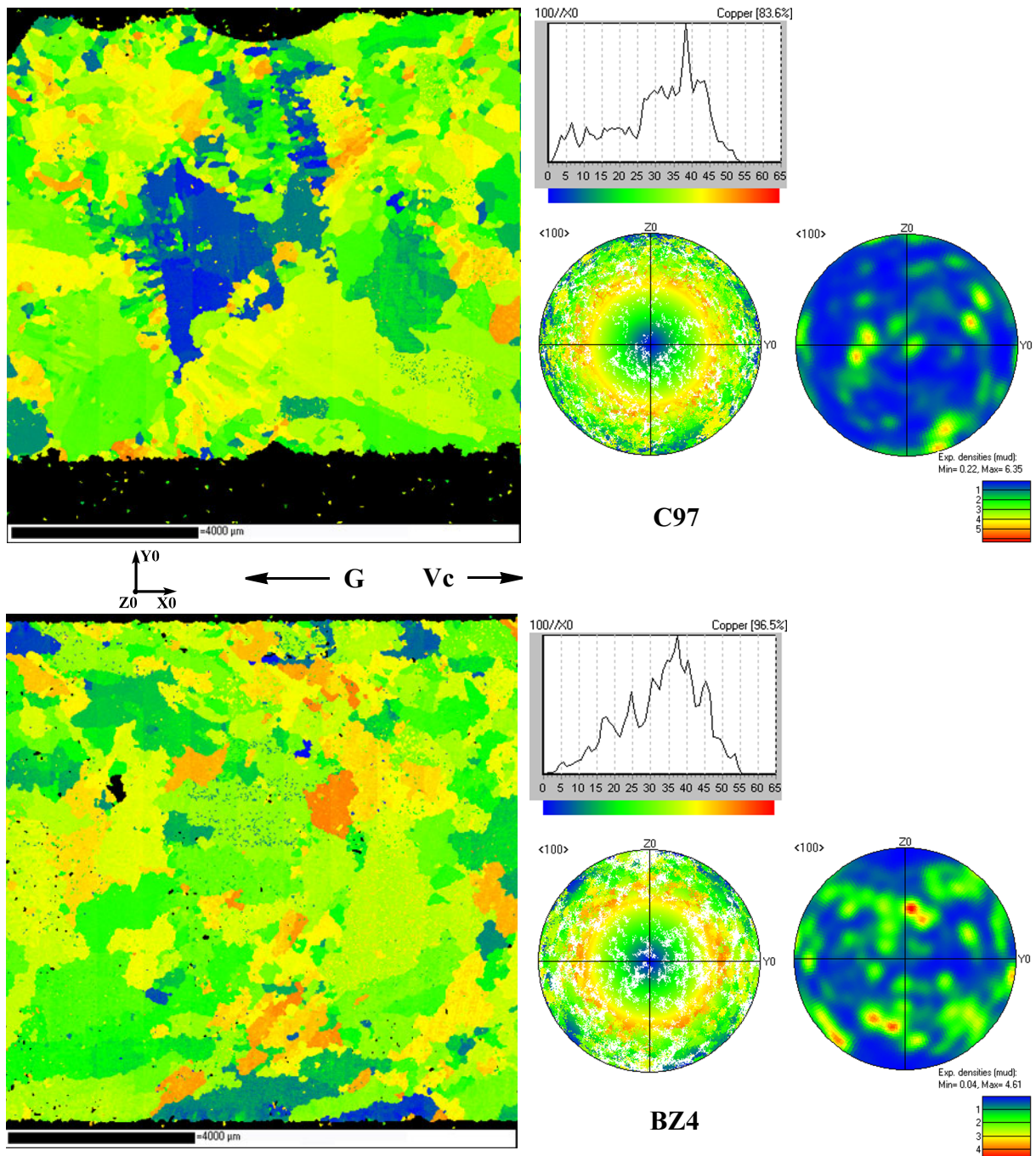


Figure 5.22 : Cartes d'orientation et figures de pôle $\langle 100 \rangle$ obtenues par analyse EBSD, pour les deux alliages solidifiés par procédé Bridgman, avec brassage électromagnétique. L'orientation des grains est déterminée par rapport à l'axe X_0 . $V_c = 4$ mm/min, puissance d'induction = 30%, position de l'inducteur (2).

Les structures observées sur les cartes EBSD sont bien des structures de grains équiaxes. Dans le cas des échantillons industriels, l'orientation des grains n'est pas tout à fait aléatoire, comme le montrent les figures de pôles qui sont associées aux cartes. La figure de pôle donnant la densité de grains pour l'alliage C97 montre une texture, faible (voir l'échelle des densités) mais réelle. Cette texture, qui correspond à une absence de grains ayant une direction $\langle 100 \rangle$

alignée sur l'axe Z0, est beaucoup moins prononcée dans le cas de l'alliage BZ4. Il est d'ailleurs difficile de conclure à la présence d'une texture, les densités mesurées étant très peu marquées. Elle pourrait être liée à l'orientation du gradient, mais plus probablement à la technique de mesure.

La taille des grains varie entre 70 et 500 μm , et entre 80 et 500 μm , pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. L'homogénéité de la structure est relativement bonne. La taille moyenne des grains est autour de 300 μm , pour les deux alliages.

Dans le cas des échantillons de type Bridgman, aucune texture n'apparaît, les grains sont orientés de manière aléatoire. La taille des grains varie entre 140 et 3000 μm , et entre 200 et 2700 μm , pour l'alliage C97 et BZ4, respectivement. La structure de grains équiaxes est beaucoup moins homogène, plus particulièrement pour l'alliage C97. En effet, dans ce cas, les conditions d'affinage ne sont pas optimales, les conditions de fragmentation et de survie des fragments ne permettent pas un affinage efficace. Il y a donc une grande disparité de dimension des grains équiaxes. On peut voir nettement sur la figure 5.22, que certaines régions ont des grains très fins (centaines de μm) contrairement à d'autres où les grains ont quelques millimètres. Le même phénomène apparaît dans le cas de l'alliage BZ4, mais de façon moins prononcée.

5.3.3. Effets des paramètres de coulée lors des essais de type Bridgman

L'étude de l'effet du brassage électromagnétique sur la microstructure des alliages C97 et BZ4 a été menée en utilisant la solidification dirigée de type Bridgman. Ce choix a été fait dans le but de simplifier la morphologie de l'interface solide-liquide et d'avoir la possibilité de contrôler d'avantage de paramètres que sur une installation industrielle. Dans cette partie, les investigations ont été menées sur l'effet de chacun de ces paramètres pour déterminer des conditions optimales d'affinage. Il est à remarquer que cette étude a été réalisée sur l'installation de solidification Bridgman avec brassage, et donc seul l'effet de ces paramètres au cours des essais Bridgman, pour les deux alliages considérés, sera pris en compte (puissance d'induction, position de l'inducteur, température du liquide, mode tirage et vitesse de coulée). L'ensemble des résultats a été obtenu sur des échantillons de 11 mm de diamètre. L'effet du diamètre sera caractérisé à la fin de cette partie.

La figure 5.23 rappelle la géométrie du système de solidification Bridgman avec induction magnétique, ainsi que les différents paramètres étudiés dans cette section.

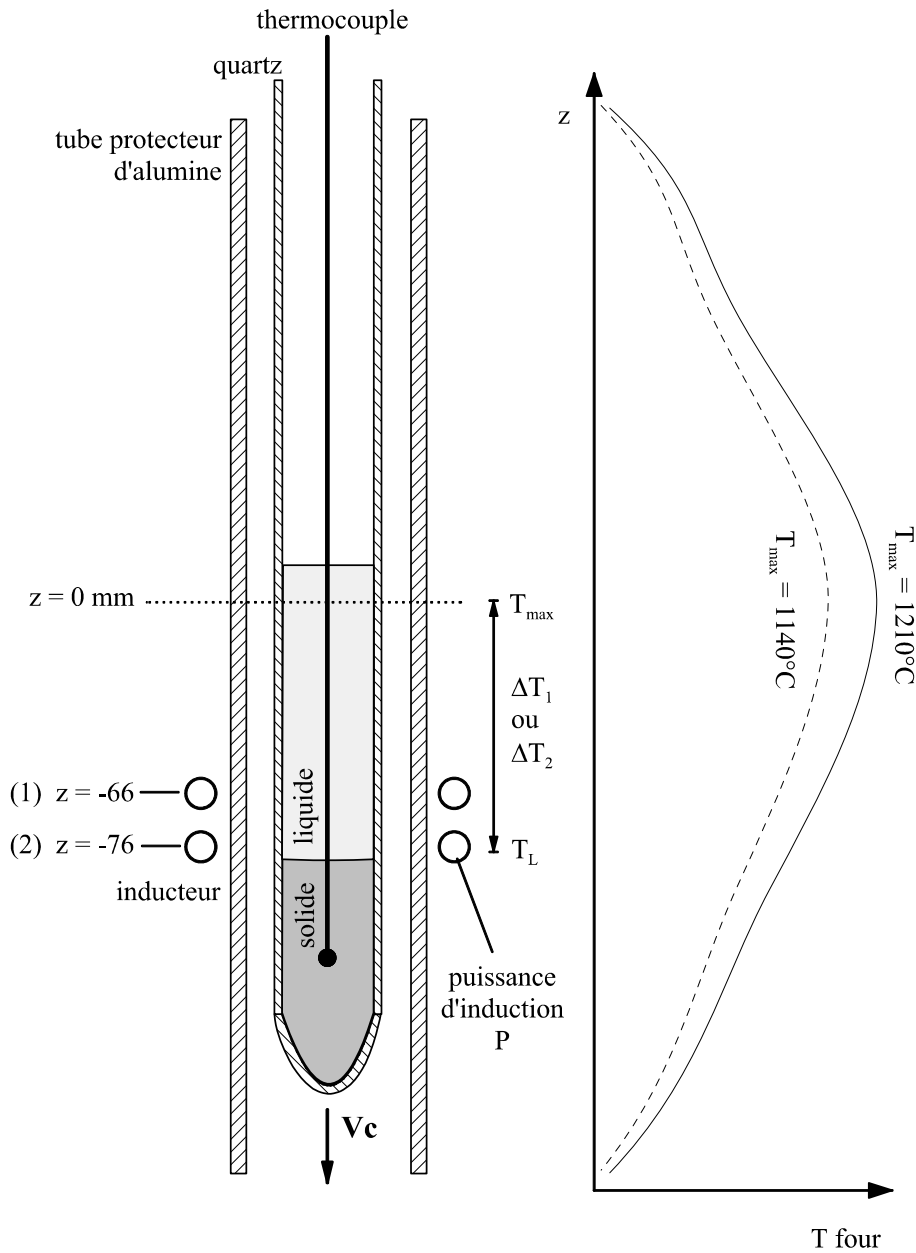


Figure 5.23 : Représentation schématique du procédé de solidification Bridgman avec induction électromagnétique. Les différents paramètres à étudier sont indiqués sur le schéma : puissance d'induction, P , position de l'inducteur (noté (1) et (2)), température du liquide, T_{\max} (en modifiant T_{\max} , le profil thermique du four change, ce qui conduit à ΔT_1 ou ΔT_2) et vitesse de coulée, V_c .

Puissance d'induction

Comme il a été montré dans le chapitre 2, la puissance d'induction joue un rôle prépondérant pour la création des mouvements de convection dans le liquide métallique. De manière générale, plus la puissance d'induction est élevée, plus la valeur de la force de Lorentz est importante, plus la vitesse induite dans le liquide est grande.

Les expériences ont été menées à deux différentes puissances d'induction : 10 et 30% de la puissance totale du générateur, ce qui correspond approximativement à 2 et 6 kW aux bornes du générateur et à une fréquence de 0.8 et 1.5 kHz, respectivement. La position de l'inducteur correspond à la position (1), c'est-à-dire à 66 mm du centre du four (fig. 5.23). La vitesse de tirage est de 4 mm/min. Les structures obtenues sont données dans la figure 5.24. L'augmentation de la vitesse de convection a un effet très limité, dans notre situation. Il faut distinguer deux cas différents. La structure de l'alliage C97 n'est affinée ni avec une puissance de 10%, ni avec 30%. De son côté l'alliage BZ4 présente un léger affinage lorsque la puissance est fixée à 30%. En effet, on peut voir sur la figure 5.24, que les grains colonnaires présents dans l'échantillon solidifié à une puissance d'induction de 10% commencent à se désorienter et apparaissent plus petits (de l'ordre de quelques millimètres). On notera que les régions situées sur le bord de l'échantillon sont plus affinées que le centre de l'échantillon, ce qui est probablement dû à la présence de sites de germination supplémentaires sur les bords (certainement due à l'évaporation du zinc).

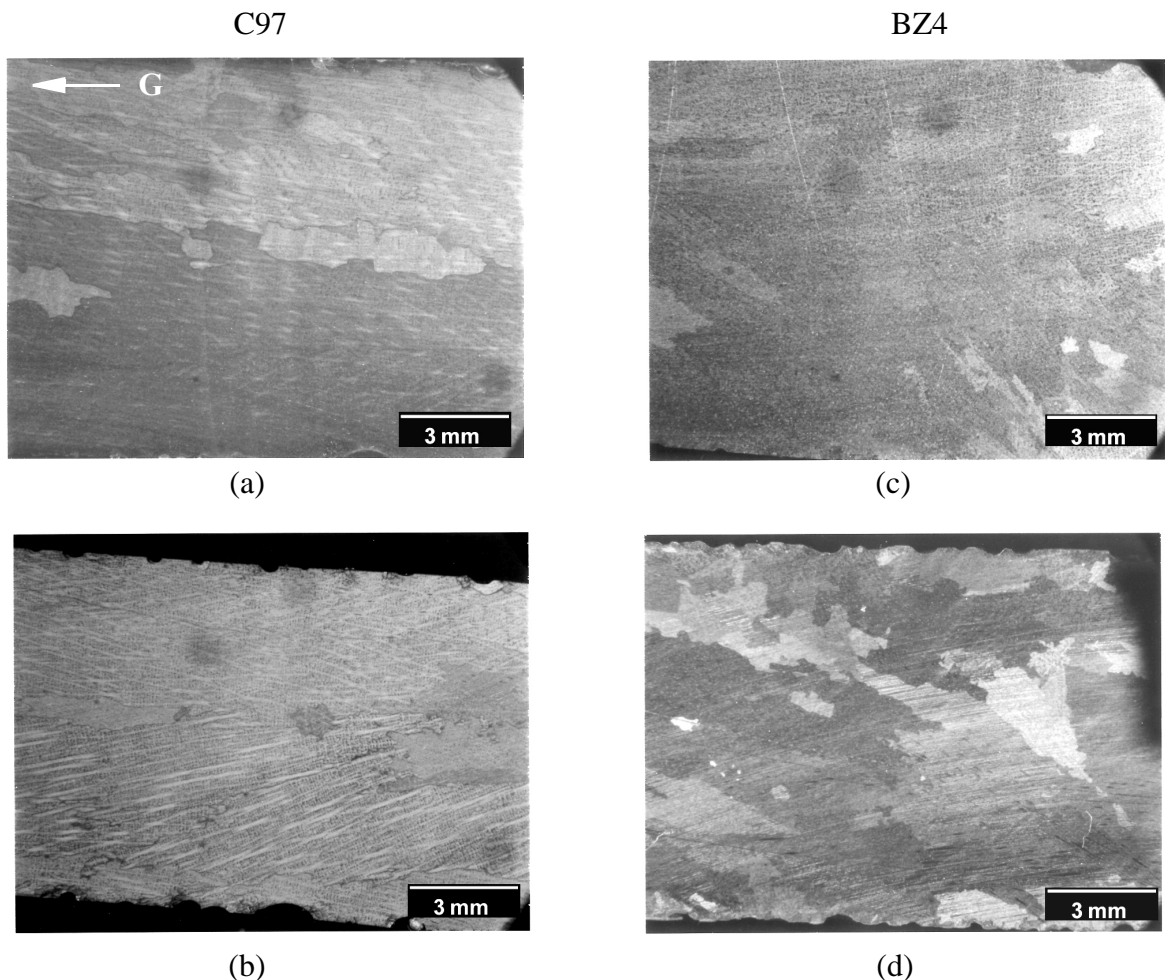


Figure 5.24 : Structures de coulée Bridgman obtenus à une puissance d'induction de 10% et 30%, pour l'alliage C97 (a) et (b), et pour l'alliage BZ4 (c) et (d), respectivement. L'inducteur est en position (1).

Dans le but de comprendre ces phénomènes, les expériences ont été instrumentées. Les courbes de la figure 5.25 présentent l'évolution de la température en fonction du temps, lors des essais de coulée. Il est important de considérer que, la vitesse de tirage étant constante, l'échelle de temps peut directement être convertie en distance que le thermocouple parcourt dans le four. La position de la bobine d'induction peut donc être repérée directement sur les courbes (flèche reportée sur chaque graphe).

La tendance générale que l'on peut déduire de ces courbes est l'homogénéisation de la température due à la convection dans le liquide. En effet, le gradient thermique à l'interface est légèrement diminué (pente de la courbe) et le changement d'état liquide-solide se produit avec un léger décalage. A la puissance de 30%, ce phénomène s'accroît, le gradient thermique à l'interface diminue d'avantage et la température du liquidus est atteinte bien plus tard.

Malgré ces tendances, le cas de l'alliage BZ4 a une particularité lorsqu'il est solidifié à une puissance de 30%. La courbe correspondante présente un changement de pente significatif au niveau de l'inducteur. Il semblerait donc qu'il y ait deux vortex de convection de part et d'autre de l'inducteur. Cette différence de comportement du liquide, qui n'apparaît que dans le cas de l'alliage BZ4, semble donc favoriser l'affinage de grain.

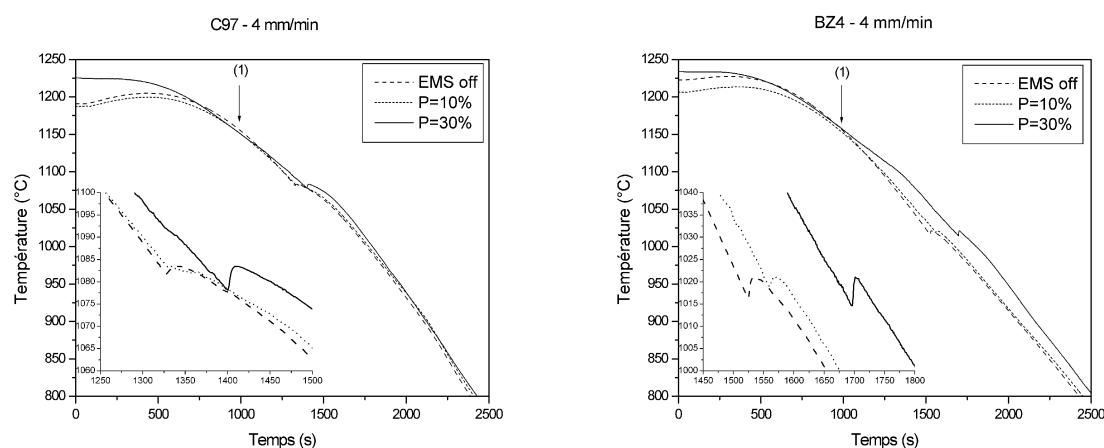


Figure 5.25 : Courbes de mesures de température lors de la solidification des alliages C97 et BZ4, à différentes puissances d'induction, 10 et 30%.

Remarquons que lorsque le métal change d'état, un réchauffement assez net est observable sur les courbes de refroidissement. Ce réchauffement n'est pas attribué à un phénomène de recalescence lié à une croissance équiaxe, puisqu'il est observé également sans brassage (croissance colonnaire). Ce phénomène est attribué à un réchauffement local autour du thermocouple, produit par un meilleur contact thermique entre le métal et le thermocouple, lorsque le métal se solidifie. Ce phénomène sera étudié plus en détails dans le chapitre suivant.

Position de l'inducteur

En considérant l'effet que peut avoir le mode de convection du liquide sur l'efficacité de l'affinage de grain, l'inducteur a été rapproché de la position du liquidus. Ce rapprochement est réalisé dans le but de concentrer l'action des mouvements de convection, sur des régions proches de la zone pâteuse, plutôt que dans le volume du liquide.

Lors des expériences, deux positions différentes de l'inducteur ont été utilisées : à 66 mm (noté (1)) et à 76 mm (noté (2)) du centre du four vers le bas (la solidification se fait en descendant l'échantillon vers le bas, voir la figure 5.23). Une puissance d'induction de 30% a été choisie, la vitesse de coulée est toujours de 4 mm/min. Les structures obtenues, lorsque l'inducteur est en position (1) et (2), peuvent être observées sur les figures 5.24 ((b), pour l'alliage C97 et (d) pour l'alliage BZ4) et 5.26 ((a), C97 et (b), BZ4), respectivement. L'effet du choix de la position (2) de l'inducteur sur la structure de grains de l'alliage BZ4, permet, cette fois-ci, un affinage conséquent : la taille des grains équiaxes variant entre 500 μm et 1.5 mm de diamètre (figure 5.26(b)). L'alliage C97 présente également une structure affinée avec l'inducteur dans cette position. La taille des grains obtenus est de l'ordre de 2 mm.

Les courbes obtenues lors de l'instrumentation de ces essais sont données à la figure 5.27. Le rapprochement de l'inducteur vers le liquidus a, semble-t-il, deux effets différents en fonction de l'alliage. Dans le cas de l'alliage C97, le gradient thermique est diminué de manière significative (voir tableau 5.5). Cette diminution du gradient thermique à l'interface conduit à l'affinage de la structure. Concernant l'alliage BZ4, la diminution minimale du gradient thermique (tableau 5.5) n'est pas l'effet le plus important. En effet, le changement de pente de la courbe de température s'est rapproché de l'interface (courbe en trait plein sur la figure 5.27 concernant le BZ4). On peut donc supposer que les mouvements de convection ont été rapprochés du liquidus, et qu'ils agissent donc d'avantage sur la refusion des bras de dendrites, améliorant l'affinage.

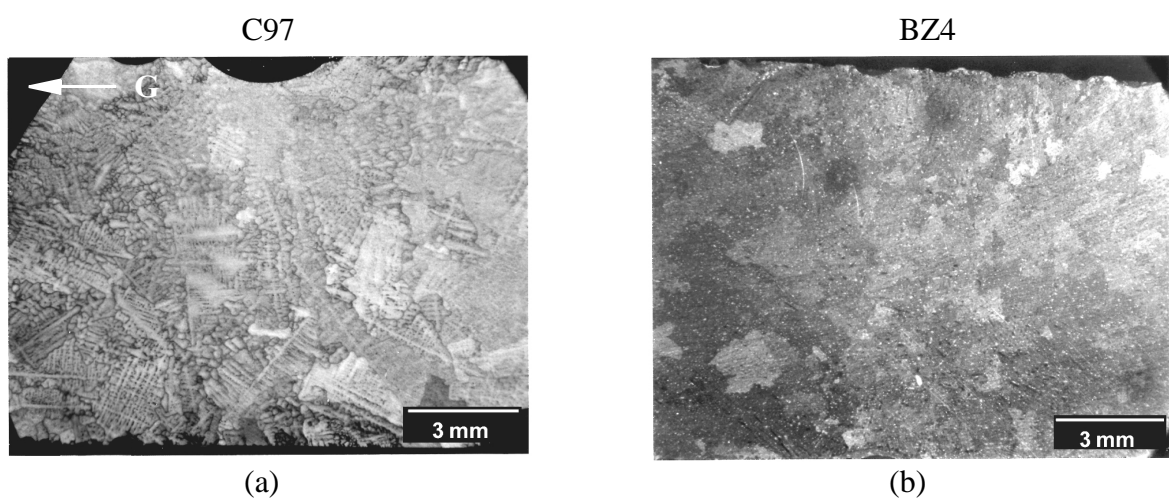


Figure 5.26 : Structures de coulée Bridgman obtenues à une puissance de 30% et avec l'inducteur en position (2), pour les alliages C97 (a) et BZ4 (b).

La distance entre l'inducteur et la position du liquidus joue donc un rôle fondamental dans l'efficacité du brassage à affiner la structure. Cependant, il est important de considérer que cette distance n'est pas la même pour les alliages C97 et BZ4 (fig. 5.27). La température maximale du liquide étant identique pour les deux alliages, la différence de température, ΔT_l , entre cette dernière et la température du liquidus est plus importante dans le cas du BZ4. L'interface est donc plus éloignée de l'inducteur. Le tableau 5.6 donne ces distances inducteur-liquidus pour les deux alliages.

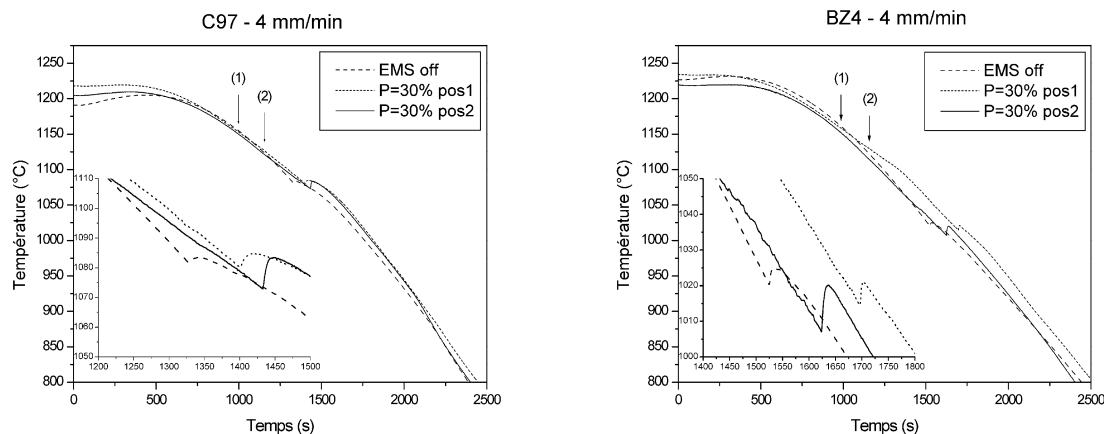


Figure 5.27 : Courbes d'évolution de la température lors de la solidification des alliages C97 et BZ4 à différentes positions de l'inducteur, notés (1) et (2) sur les graphes.

Tableau 5.5: Effet de la position de l'inducteur sur la valeur du gradient thermique proche du liquidus, lors de la solidification des alliages C97 et BZ4.

Alliage	Gradient thermique, G (K/m)		
	EMS off	P=30%, position (1)	P=30%, position (2)
C97	3600	2800	2600
BZ4	3600	3500	3300

Tableau 5.6: Distances inducteur-liquidus mesurées pour diverses conditions expérimentales.

Alliage	Distance inducteur-liquidus (mm)			
	EMS off, Position (1)	EMS off, Position (2)	P=30%, Position (1)	P=30%, Position (2)
C97	22	12	27	18
BZ4	35	25	47	32

Température du liquide

Un rapprochement supplémentaire de l'inducteur, dans le cas de l'alliage BZ4, étant techniquement impossible sur notre installation, la température maximale du liquide a été adaptée, dans le but d'obtenir la même distance inducteur-interface pour cet alliage que dans le cas (2) de l'alliage C97. Rappelons que l'alliage doit être totalement liquide avant la solidification, afin d'éviter toute influence d'une refusion partielle du solide, au cours de l'essai. La température maximale du four ne peut donc pas être diminuée pour l'alliage C97. Par conséquent la température du liquide, correspondant à l'alliage BZ4, a été diminuée pour atteindre la valeur de 1140 °C. Les différences de température entre la température maximale du liquide, T_{max} , et celle du liquidus sont donc :

- pour $T_{max} = 1210$ °C, $\Delta T_l(C97) = 129$ °C et $\Delta T_l(BZ4) = 198$ °C
- pour $T_{max} = 1140$ °C, $\Delta T_2(BZ4) = 128$ °C.

Les mesures de température, réalisées au cours des essais de solidification avec la valeur ΔT_2 , nous permettent de vérifier la distance inducteur-liquidus (fig. 5.28). Les valeurs des distances, mesurées à partir de ces courbes, sont reportées dans le tableau 5.7. Le but est donc atteint : la distance inducteur-liquidus pour l'alliage C97 avec ΔT_l (tableau 5.6) est alors la même que celle pour l'alliage BZ4 avec ΔT_2 (tableau 5.7).

Avec la diminution de ces distances, l'effet du brassage est accru. Les mouvements de convection sont très proches de l'interface (changement de pente de la courbe avant le liquidus), surtout dans le cas où l'inducteur est en position (2) (voir la figure 5.28).

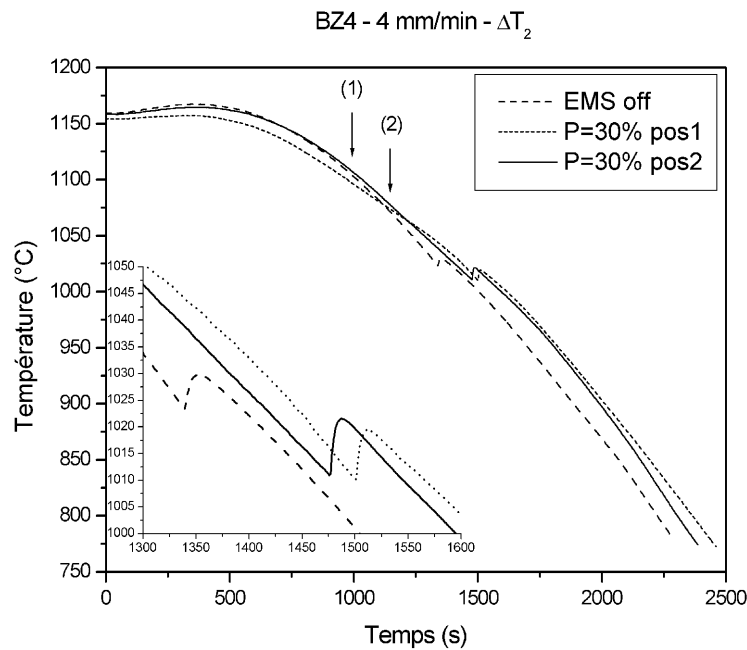


Figure 5.28 : Courbes d'évolution de la température lors de la solidification de l'alliages BZ4, lorsque la température maximale du liquide a été abaissée à 1140 °C. Les différentes positions de l'inducteur sont notées (1) et (2) sur le graphe.

Tableau 5.7: Distances inducteur-liquidus mesurées pour diverses conditions expérimentales, dans le cas de l'alliage BZ4 à ΔT_2 .

Alliage	Distance inducteur-liquidus (mm), pour ΔT_2			
	EMS off, Position (1)	EMS off, Position (2)	P=30%, Position (1)	P=30%, Position (2)
BZ4	23	13	33	18

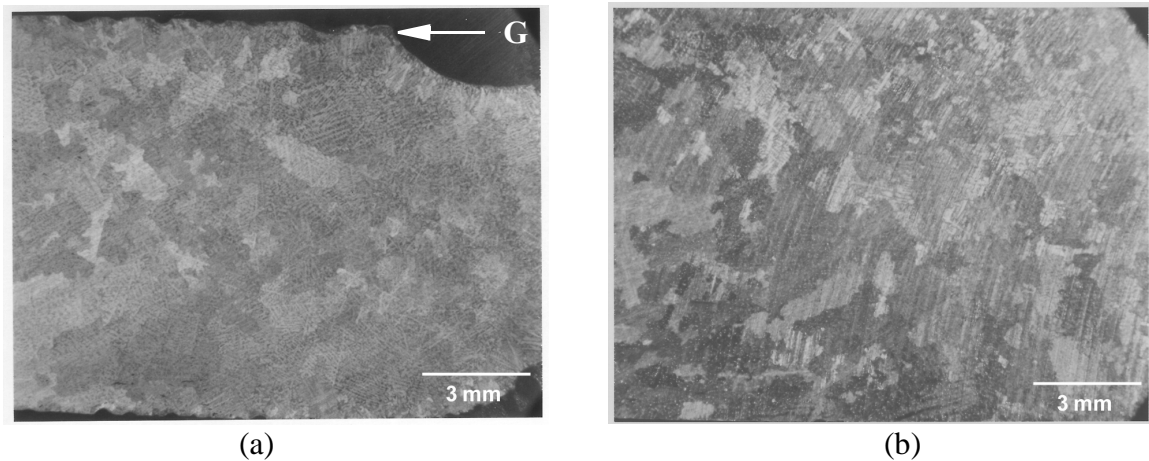


Figure 5.29 : Macrostructures observées sur l'alliage BZ4, solidifiés avec ΔT_2 et l'inducteur en position (1) (a) et (2) (b).

L'efficacité de l'affinage s'en retrouve augmentée. Les figures 5.29 (a) et (b) montrent des grains équiaxes, obtenus lors de la solidification de l'alliage BZ4, d'une taille moyenne inférieure au millimètre. Lorsque l'inducteur est le plus proche (figure 5.29(b)), la taille des grains est plus homogène dans l'échantillon. On peut donc conclure que la distance entre la position de l'inducteur et du liquidus est un paramètre prépondérant, pour l'efficacité du brassage électromagnétique sur la structure. La diminution de cette distance augmente l'affinage pour les deux alliages, mais de façon beaucoup plus marquée dans le cas de l'alliage BZ4. Remarquons que cette diminution de la distance diminue également le gradient thermique proche de l'interface lorsque l'inducteur est en position (2) (voir tableaux 5.5 et 5.8).

Tableau 5.8: Effet de la position de l'inducteur sur la valeur du gradient thermique proche du liquidus, lors de la solidification de l'alliage BZ4, à ΔT_2 .

Alliage	Gradient thermique, G (K/m)		
	EMS off	P=30%, position (1), ΔT_2	P=30%, position (2) ΔT_2
BZ4	3600	3500	3050

Mode de tirage et vitesse de coulée

Bien évidemment, les conditions de coulées étudiées en solidification Bridgman, ne sont pas similaires à celles utilisées en coulée continue. Rappelons que lors des coulées industrielles, le tirage se fait de manière semi-continue (cycles d'avance-pause-recul-pause) et que les vitesses de coulée sont de 25 à 100 fois supérieures. Par conséquent, les effets du mode de tirage et de la vitesse de coulée sur la structure obtenue en solidification Bridgman ont été étudiés.

Dans le but de caractériser l'effet du mode de tirage sur la structure de coulée, plusieurs modes ont été choisis pour représenter au mieux celui utilisé en industrie. Dans notre cas, il faut respecter la vitesse moyenne utilisée, c'est à dire 4 mm/min. Deux cycles ont été définis :

- C_1 : avance à 8 mm/min pendant 20 s, pause pendant 2 s, recul à 8 mm/min pendant 6 s et pause pendant 2 s. Cela donne une vitesse moyenne de 3.74 mm/min.
- C_2 : avance à 8 mm/min pendant 60 s, pause pendant 6 s, recul à 8 mm/min pendant 18 s et pause pendant 6 s. Ce qui donne toujours une vitesse moyenne de 3.74 mm/min.

Cette déstabilisation brutale et discontinue de l'interface, au cours de la solidification, n'a aucun effet positif sur l'affinage des grains. Aux conditions expérimentales définies auparavant ($P=30\%$, position (2) et ΔT_1 pour l'alliage C97 et ΔT_2 pour l'alliage BZ4), l'emploi de ces cycles de tirage semble d'ailleurs diminuer la propension à former des grains équiaxes. Dans le cas de l'alliage C97, la structure ainsi formée est quasiment colonnaire. La figure 5.30 illustre cette tendance pour les deux alliages.

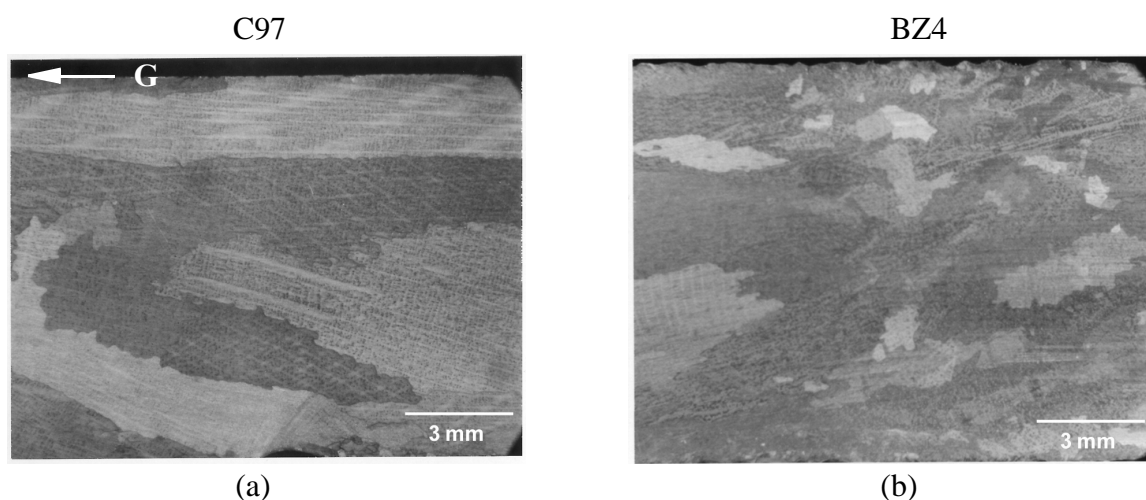


Figure 5.30 : Structures de coulée des alliages C97 (a) et BZ4 (b), solidifiés en utilisant le mode de tirage C_2 .

Toujours dans l'idée de déstabiliser l'interface, l'effet de la vitesse de tirage a été étudiée pour des vitesses de 4 mm/min (correspondant à celle utilisée jusqu'à présent), 8 mm/min et 30 mm/min. Dans les conditions optimales déduites des expériences précédentes, la solidification des alliages à une vitesse de tirage de 8 mm/min n'a aucun effet supplémentaire sur la structure de coulée par rapport à une vitesse de 4 mm/min. Par contre, pour une vitesse de tirage de 30 mm/min, l'effet est important. La figure 5.31 illustre cet effet pour les deux systèmes.

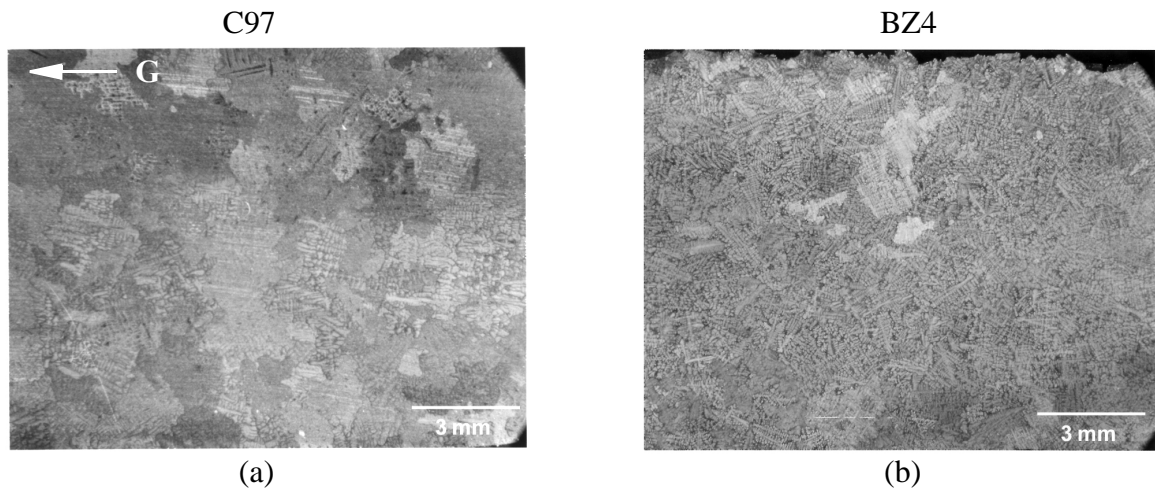


Figure 5.31 : Structure de coulée des alliages C97 (ΔT_1 , position (2)) (a) et BZ4 (ΔT_2 , position (2)) (b), solidifiés à 30 mm/min, avec EMS.

Les tailles de grains obtenues sont de l'ordre 1 à 1.5 mm et de moins de 500 μm pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. L'ensemble de la structure s'avère également très homogène, renforçant l'idée qu'il s'agit là des meilleures conditions d'obtention de grains fins. Il est cependant important de noter que, dans ce cas, la vitesse est relativement élevée pour une solidification de type Bridgman. En effet, le front de solidification n'est certainement plus plan, il est légèrement incurvé, comme le montre la structure observée sur la figure 5.32. Cette figure correspond simplement à une solidification Bridgman sans brassage à 30 mm/min. Ce phénomène induit par la courbure des isothermes se rapproche des conditions de coulée industrielles, mais dans une moindre mesure.

L'augmentation de la vitesse de coulée a également un effet important sur l'étendue de la surfusion, en avant du front de solidification. En effet, pour des systèmes multicomposés avec un coefficient de diffusion égal et constant, la surfusion est fonction de :

$$\Delta T^* \sim \left[\sum_{i=1}^n m_i C_{0,i} (1 - k_i) \right]^{1/2} V^{1/2}$$

Dans un gradient thermique donné, les valeurs des surfusions obtenues pour l'alliage C97 et BZ4 peuvent donc être comparées :

- A vitesse équivalente, $\Delta T^*(BZ4) = 2.45 \cdot \Delta T^*(C97)$
- $\Delta T^*(BZ4) = \Delta T^*(C97)$ si $V(C97) = 6 \cdot V(BZ4)$.

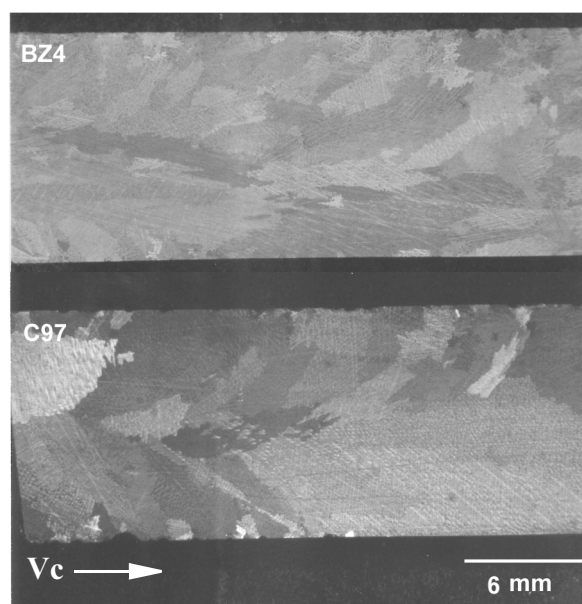


Figure 5.32 : Structure de coulée des alliages C97 et BZ4, solidifiés à 30 mm/min sans EMS.

Si on considère que la vitesse de solidification, V , est égale à la vitesse de coulée, V_c , à l'état stationnaire, on peut donc affirmer que l'étendue de la zone en surfusion en avant du front de solidification, dans la cas de l'alliage C97, est équivalente à celle de l'alliage BZ4, lorsque $V_c(\text{C97}) = 6 \cdot V_c(\text{BZ4})$. Cette surfusion est donc un paramètre également fondamental, puisque l'alliage C97 ne présente un affinage efficace que lorsqu'il est coulé à 30 mm/min, c'est-à-dire à une surfusion à peu près équivalente à celle obtenue pour le BZ4, solidifié à 4 mm/min.

L'effet de la vitesse de tirage sur la surfusion en avant du front de solidification sera étudiée en détail dans le chapitre 6.

Diamètre de l'échantillon

Le diamètre de l'échantillon peut avoir un effet important via le mode d'écoulement du liquide. En solidification Bridgman, il est plus difficile d'obtenir un front de solidification parfaitement plan dans des échantillons de grand diamètre. C'est la raison pour laquelle, le diamètre utilisé est généralement de 6 mm.

Cependant, il est intuitivement concevable que plus le diamètre est important, plus l'établissement des vortex de convection sera aisé. Par conséquent, les essais de solidification Bridgman ont été réalisés principalement sur des échantillons de diamètre égal à 11 mm plutôt que sur des échantillons de 6 mm de diamètre. Ceci facilite la convection dans le liquide, tout en conservant un front de solidification plan pour des faibles vitesses de tirage. Pour exemple, la figure 5.33 montre les structures obtenues pour un diamètre de 6 mm sous les conditions suivantes :

- C97 - ΔT_1 - position de l'inducteur (2) - 4 mm/min
- BZ4 - ΔT_2 - position de l'inducteur (2) - 4 mm/min

La diminution de diamètre tend à diminuer l'efficacité du brassage dans le cas de l'alliage C97, sa structure étant colonnaire. Par contre, l'alliage BZ4 est toujours affiné, la taille des grains étant assez similaire à celle obtenue avec des échantillons de diamètre égal à 11 mm.

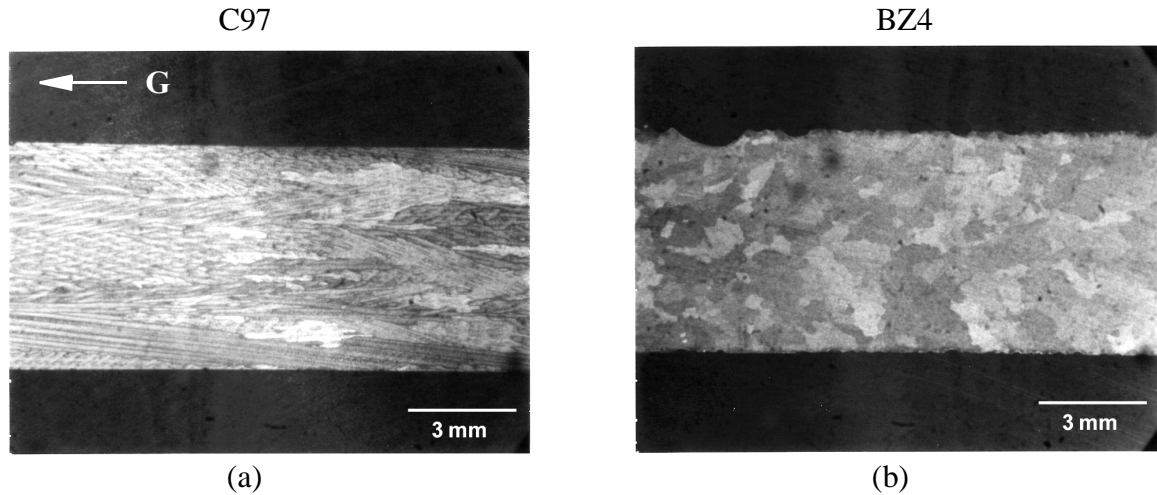


Figure 5.33 : Structures de coulée des alliages C97 (a) et BZ4 (b) de diamètre 6 mm, solidifiés avec EMS.

Taille des structures équiaxes

Le tableau 5.9 répertorie les tailles moyennes des grains équiaxes, qui ont été évaluées à partir des micrographies optiques des échantillons obtenus en solidification Bridgman, en fonction des conditions expérimentales étudiées précédemment.

Tableau 5.9: Tailles moyennes des grains équiaxes en fonction des conditions expérimentales (solidification Bridgman avec EMS)

Alliages	Conditions expérimentales				Taille moyenne des grains équiaxes (mm)
	Surchauffe et position d'inducteur	Vc (mm/min)	Diamètre (mm)	Puissance d'induction (%)	
C97	ΔT_I , pos. (1)	4	11	10	pas d'affinage
				30	pas d'affinage
	ΔT_I , pos. (2)	4	6	30	pas d'affinage
			11	30	~ 2
		30	11	30	~ 1.5
BZ4	ΔT_I , pos. (1)	4	11	10	pas d'affinage
				30	> 2
	ΔT_I , pos. (2)	4	11	30	~ 1.5
			6	30	~ 1.5
		4	11	30	< 1
		30	11	30	~ 0.5

5.3.4. Effets des paramètres de coulée industrielle

Dans cette partie, l'effet de deux paramètres principaux de coulée industrielle a été étudié : la vitesse de coulée et la puissance d'induction.

Vitesse de coulée

Les échantillons de 18 mm de diamètre sont solidifiés à 4 vitesses de tirages, 100, 200, 300 et 400 mm/min, avec une puissance d'induction d'environ 6 kW à haute fréquence. Les structures résultantes sont présentées à la figure 5.34 pour les deux alliages.

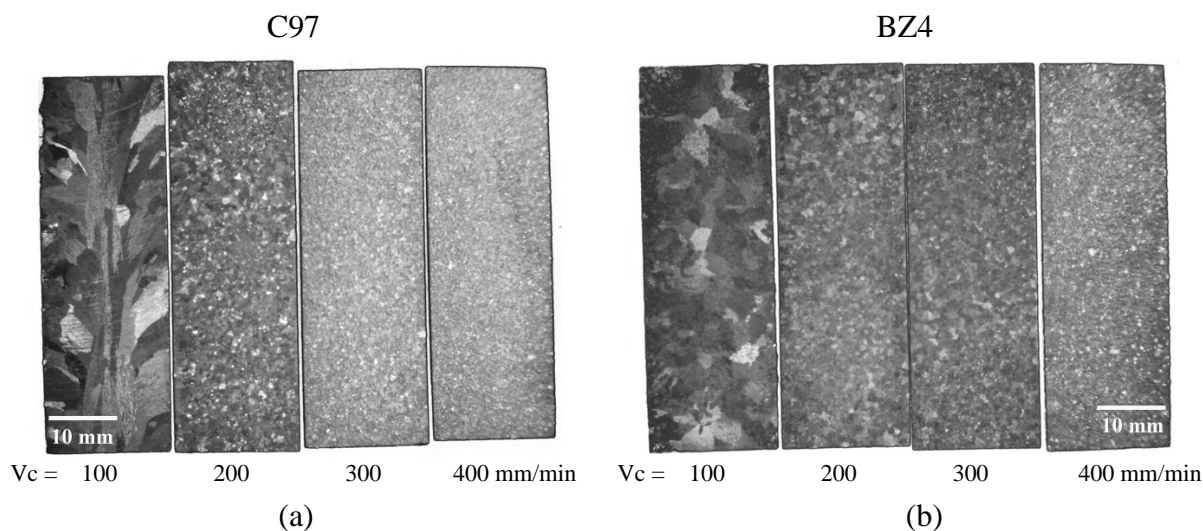


Figure 5.34 : Photographies des structures de grain des alliages C97 (a) et BZ4 (b), solidifiés par coulée continue, à différentes vitesses de coulée, avec brassage électromagnétique.

L'emploi d'une vitesse de tirage modérée, semble donc défavorable à l'affinage des grains. La tendance est la même pour les deux alliages, la structure obtenue à 100 mm/min n'est pas affinée. Rappelons que dans le cas des coulées industrielles, les inducteurs ne sont pas positionnables, la position de l'interface par rapport aux inducteurs est donc uniquement fonction de la vitesse de tirage et de la puissance d'induction. Il semble donc qu'à partir d'une certaine vitesse de tirage, la convection dans liquide ou la position des vortex ne soit plus assez efficace pour affiner la structure. Ce phénomène est dû à l'écrantage du champ électromagnétique par le métal solide. En effet, à des vitesses de tirage modérées, l'interface solide-liquide descend en direction de l'inducteur, la partie solidifiée de l'alliage écrante donc le champ magnétique à la surface du fil (figure 5.35). L'intensité du brassage dans la partie liquide s'en trouve donc diminuée fortement.

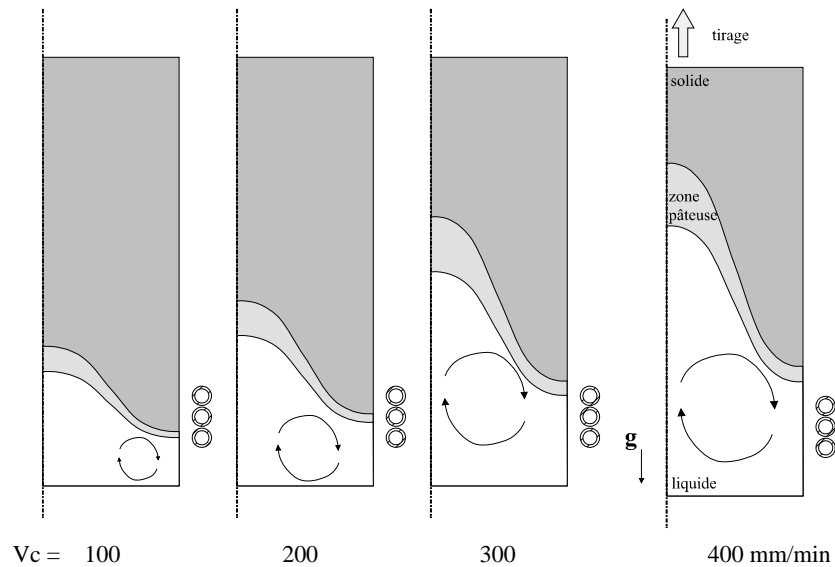


Figure 5.35 : Position de l'interface solide-liquide en fonction des vitesses de coulée industrielle.

Puissance d'induction

La figure 5.36 présente les macrostructures obtenues pour les conditions de coulées industrielles suivantes :

- alliage C97, coulé à 200 mm/min avec une puissance d'induction égale à 50% (environ 6 kW) et à 30% (environ 4 kW) de la puissance maximale,
- alliage BZ4, coulé à 200 mm/min avec une puissance d'induction égale à 52% et à 30% de la puissance maximale.

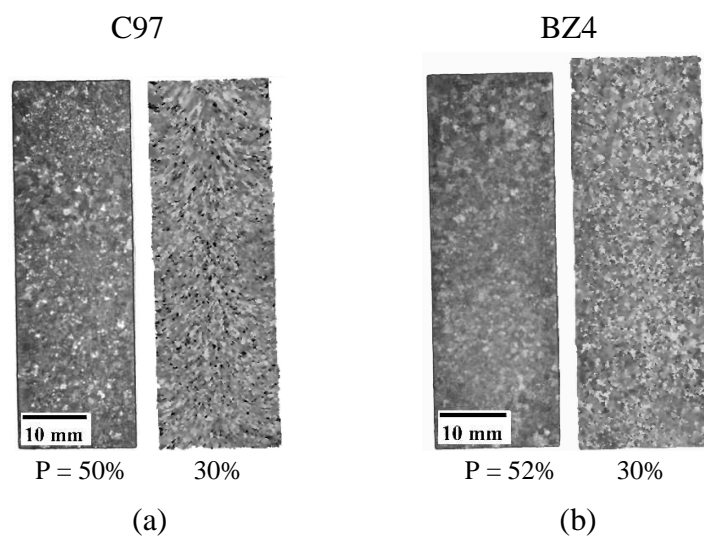


Figure 5.36 : Macrostructures obtenues pour l'alliage C97 (a) et BZ4 (b) à $V_c = 200$ mm/min et à différentes puissances d'induction.

Rappelons que lors des conditions de coulée standard, la puissance d'induction utilisée est de 50%, donc environ 6 kW. Pour étudier son effet sur la structure de grains, cette dernière a été diminuée à 30%. L'effet de cette diminution de puissance sur la taille et la morphologie des grains de l'alliage C97 et BZ4 sont distingués. En effet, s'il ne semble pas avoir d'incidence sur la structure de l'alliage BZ4, alors que l'affinage de l'alliage C97 est légèrement moins efficace avec une puissance de 30%. Pour ce dernier, la structure est encore affinée mais les grains présentent une légère orientation du centre du barreau vers sa surface. La puissance d'induction étant étroitement liée à la convection du liquide, il semble donc que la diminution de cette convection diminue légèrement la formation de grains équiaxes, spécifiquement dans le cas de l'alliage C97.

5.4. MODÉLISATION DE L'EFFET DU CHAMP MAGNÉTIQUE À L'ÉCHELLE DES PROCÉDÉS

Cette partie présente des résultats obtenus avec le logiciel de simulation numérique des phénomènes de solidification par éléments finis (FEM), *calcosoft2D*, développé conjointement par la société Calcom SA et le Laboratoire de Métallurgie Physique de l'EPFL. Les simulations ont été réalisées uniquement dans le cas de la solidification de type Bridgman. En effet, des simulations du procédé de coulée continue ont déjà été réalisées avant le début du projet, par le partenaire industriel [113]. Les tendances observées sont comparables aux résultats obtenus en simulation Bridgman, elles ne seront donc pas présentées ici.

5.4.1. Simulation du procédé de solidification Bridgman : logiciel utilisé et choix des conditions aux limites

Le logiciel *calcosoft2D* a été choisi puisqu'il a été développé dans le but de simuler les phénomènes liés à la solidification d'alliages, tenant compte des transferts de chaleur, et surtout, des phénomènes liés au changement de phase. Pour modéliser la solidification d'alliages avec convection dans le liquide, elle-même produite par l'action d'un champ magnétique, il est nécessaire de considérer trois phénomènes :

- les échanges thermiques au sein des différents domaines de l'installation, en tenant compte des phénomènes de radiation,
- le transport de la matière, notamment la convection présente dans le métal liquide,
- l'électromagnétisme, c'est à dire le couplage entre le champ magnétique créé par la bobine d'induction et le métal.

En résumé il est possible de calculer le champ magnétique, la convection dans le liquide sous l'action des forces de Lorentz, l'influence du brassage sur la température du métal (modification de la position de l'interface liquide-solide) et l'influence de la position du brasseur électromagnétique. Une attention particulière doit être apportée aux approximations qui sont considérées lors de ces simulations (voir chapitre 3), notamment pour la résolution de l'équation de la quan-

tité de mouvement. Le logiciel *calcosoft2D* est basé sur un modèle d'écoulement laminaire, aucun modèle de turbulence n'est pris en compte. Par conséquent, la détermination des mouvements de convection, induits par l'action des forces de Lorentz, est uniquement qualitatif. Les valeurs numériques des vitesses du fluide ne serviront qu'à comparer les tendances entre les deux alliages.

Il est également important de noter qu'il ne s'agit que de simulations au niveau macroscopique (position de l'interface, vitesse du liquide, températures, ... etc). Ces modèles ne permettent pas de déterminer directement les conditions expérimentales qu'il faut adopter pour obtenir un affinage des grains efficace et optimal. Cet outil de simulation est utilisé pour vérifier s'il y a effectivement brassage, et caractériser l'influence de différents paramètres sur ce brassage, notamment la position des vortex de convection par rapport au liquidus.

5.4.2. Modélisation des expériences en laboratoire

Le but de la modélisation des expériences en laboratoire est de rendre compte de la création des mouvements de convection induits par l'action du champ magnétique. Il sera également possible de caractériser l'influence des paramètres expérimentaux, qui ont été étudiés précédemment sur la convection. Les simulations ont été réalisées en état stationnaire. La figure 5.37 représente la partie du four Bridgman qui a été modélisée.

Les simulations ont été réalisées sur les deux alliages C97 et BZ4, avec et sans brassage électromagnétique. Etant donné que l'étude expérimentale de l'effet des paramètres de coulée, a montré que le facteur prédominant est la distance inducteur-liquidus, seul l'effet de cette dernière a été considéré lors des simulations numériques. De plus, seule une partie du dispositif est montré pour faciliter la visualisation des résultats (correspond à la partie de $z = 0.07$ à 0.15 m, voir figure 5.37). Remarquons que les géométries du corps de chauffe et de l'isolation ont été simplifiées dans le but de limiter les temps de calcul. Le diamètre de l'échantillon a été fixé à 11 mm dans tous les cas. La puissance d'induction a été fixée à 6 kW.

Les propriétés physiques qui ont été utilisées pour les alliages C97 et BZ4 sont répertoriées en annexes. L'évolution de la fraction de solide déterminée expérimentalement par SPTA, a été implémentée pour les deux alliages. Le nombre de point définissant cette évolution a néanmoins été diminué, tout en restant représentatif de la courbe originale.

Les conditions aux limites, qui ont été utilisées lors des simulations numériques, sont relativement simples (voir schéma de la figure 5.35, les conditions aux limites sont écrites en bleu) :

- l'échantillon et son creuset en quartz descendent dans le four à 4 mm/min. Le coefficient d'échange entre les deux domaines est considéré constant et égal à $5000 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$. Sur l'axe de symétrie le flux est choisi nul. Sur la partie externe du creuset, le coefficient d'échange de $200 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ avec la température extérieure qui dépend du profil de température imposé (voir conditions imposées sur le corps de chauffe).
- sur la face interne du tube d'alumine, les mêmes conditions qui définissent la face externe du creuset de quartz, ont été choisies;
- Au contact entre le tube d'alumine et le corps de chauffe, une condition de Dirichlet est imposée. Le profil de température imposé le long de cet interface, est obtenu à partir des

mesures expérimentales;

- les autres conditions aux limites (partie externe du corps de chauffe et isolations) ne sont pas importantes dans notre cas, elles n'influencent pas les résultats obtenus.

Les résultats de simulation correspondant à l'alliage C97 sont montrés sur la figure 5.38. Concernant l'essai sans brassage électromagnétique, une convection naturelle très faible est observée. La valeur maximale de la vitesse du liquide au centre du métal, est de l'ordre de 0.8 mm/s. Lorsque le brassage est enclenché, des mouvements de convection, induits par l'action des forces de Lorentz, apparaissent dans la partie liquide du métal. L'intensité de la convection est, semble-t-il, indépendante de la position de l'inducteur. En effet, les vitesses maximales calculées sont d'environ 33 mm/s lorsque l'inducteur est en position (1), et d'environ 32 mm/s dans le second cas. L'écrantage du champ magnétique causé par la présence de métal solide n'a pas d'influence directe sur les vitesses du liquide, par contre le vortex de convection situé sous l'inducteur est supprimé, lorsque l'inducteur est en position (2). Le brassage électromagnétique tend à homogénéiser la température proche du liquidus, la position de l'interface descend donc d'environ 1 mm dans le procédé (fig. 5.39). Les courbes représentées dans la figure 5.39 correspondent à des profils déterminés dans l'échantillon et parallèlement à la surface de ce dernier (profils verticaux proches de la surface de l'échantillon).

Les modes de convection (un ou deux vortex), qui varient en fonction de la position de l'inducteur, sont illustrés qualitativement par le ou les changements de pente des profils de température observables sur la figure 5.39(b).

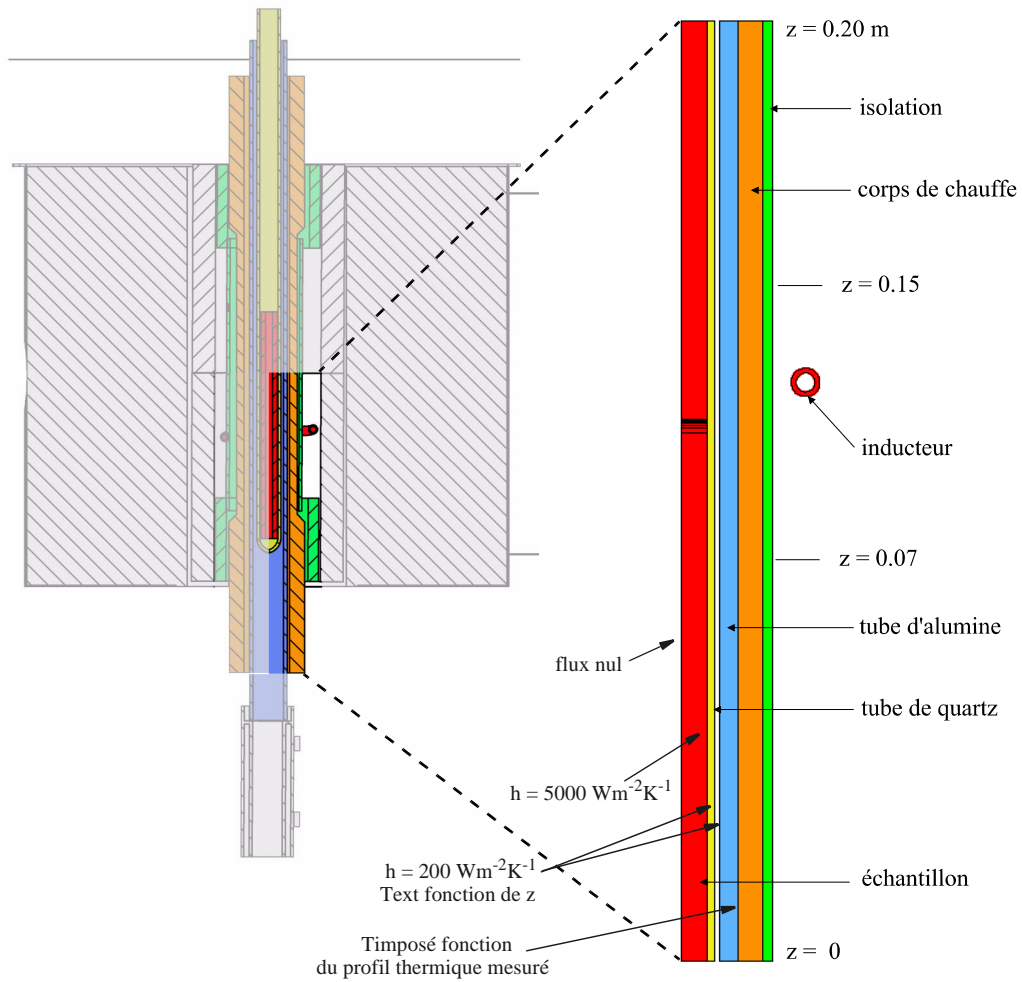


Figure 5.37 : Illustration de la partie du four Bridgman modélisée (éléments en couleur sur la figure de gauche) et de la visualisation des résultats (à droite).

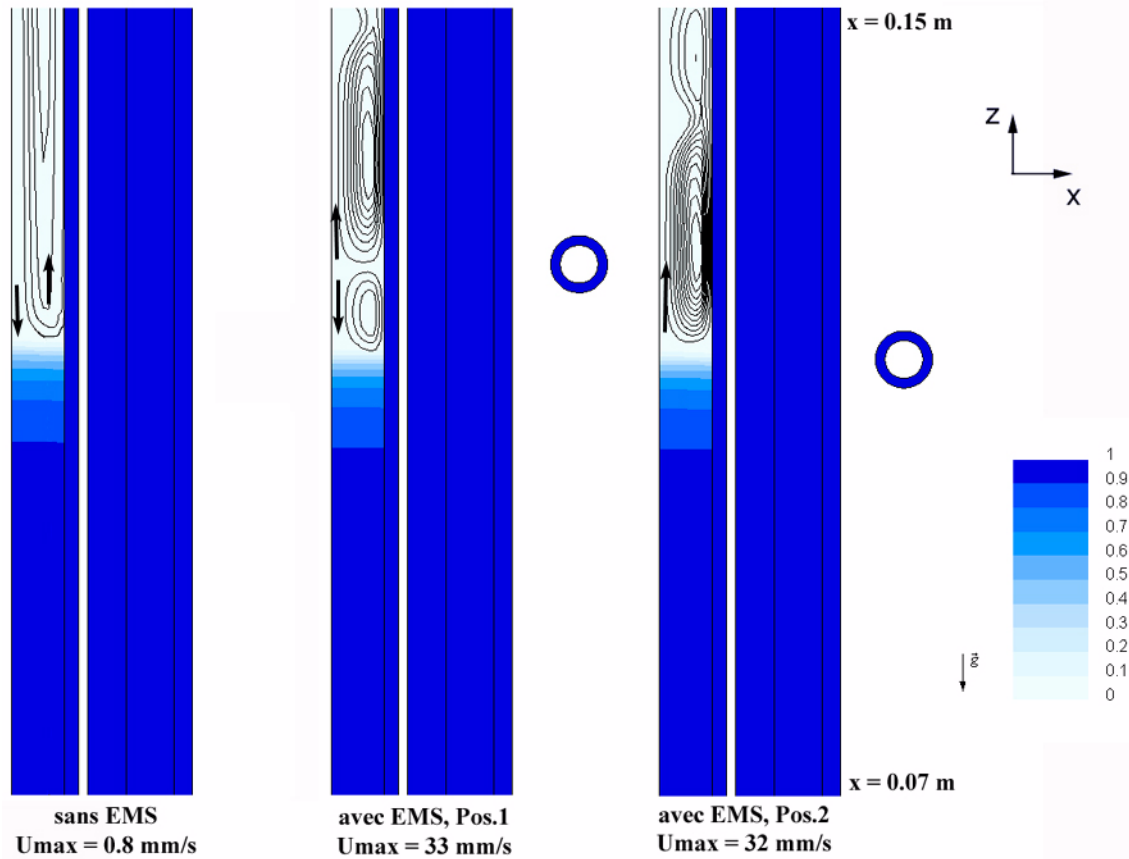


Figure 5.38 : Résultats de simulation pour l'alliage C97 avec et sans EMS, pour deux positions différentes de l'inducteur. La fraction de solide est représentée par les graduations bleues, les courants de convection sont illustrés par les lignes de courant dans le liquide, avec indication de la vitesse maximale, U_{max} .

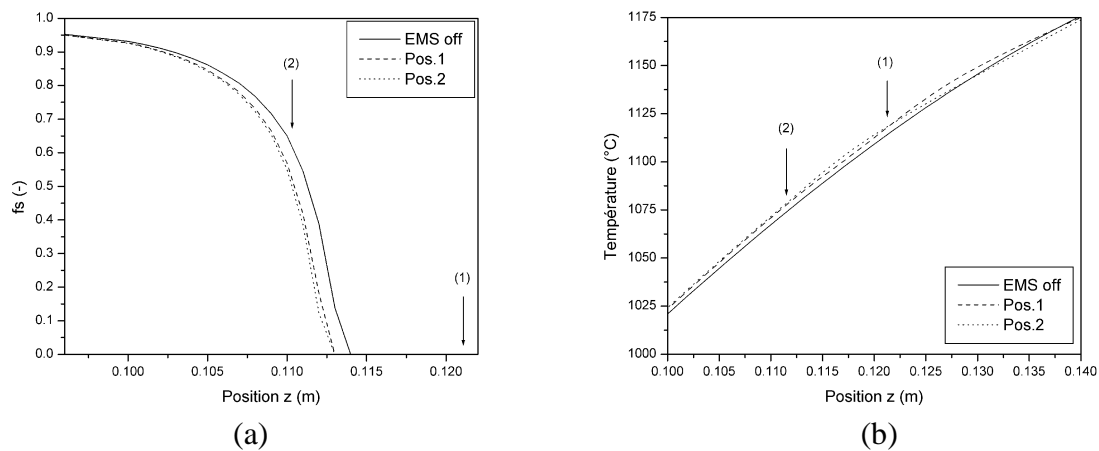


Figure 5.39 : Profils de l'évolution de la fraction de solide (a) et de température (b) pour l'alliage C97. Rappelons que le bas de l'échantillon est à la position $z = 0$. Les numéros (1) et (2) correspondent à la position (1) et (2) de l'inducteur, respectivement.

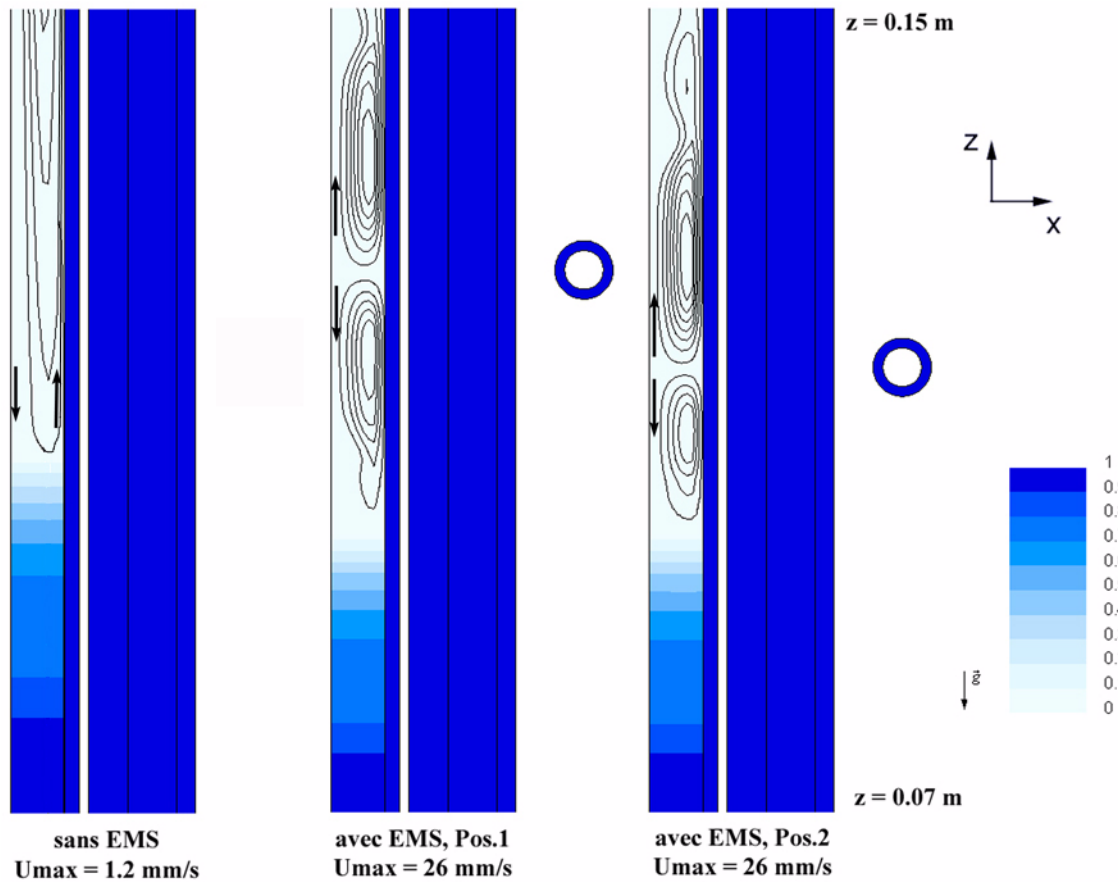


Figure 5.40 : Résultats de simulation pour l'alliage BZ4 avec et sans EMS, pour deux positions différentes de l'inducteur. La fraction de solide est représentée par les graduations bleues, les courants de convection sont illustrés par les lignes de courant dans le liquide, avec indication de la vitesse maximale, U_{max} .

Les résultats de simulation correspondants à l'alliage BZ4 sont montrés sur la figure 5.40. En général, les mêmes observations que pour l'alliage C97 peuvent être faites, à savoir, la présence de convection naturelle faible lorsque qu'il n'y a pas d'induction électromagnétique et une convection importante dans le liquide lorsque l'induction est enclenchée. La valeur correspondante à l'intensité maximale de la convection naturelle calculée est de l'ordre du mm/s. La présence de champ magnétique induit des courants de convections répartis de part et d'autre de la position de l'inducteur. Les valeurs maximales calculées sont de 26 mm/s pour les deux positions de l'inducteur. Comme pour le cas de l'alliage C97, la position de l'inducteur n'a aucun effet sur l'intensité du brassage. Cependant, lorsque l'inducteur est en position 2, les deux vortex de convection coexistent, contrairement au cas de l'alliage C97. Ce phénomène, déjà observé lors des expériences, vient du fait que la différence de température entre le liquide et le liquidus est plus importante pour l'alliage BZ4. La distance inducteur-interface est donc également plus importante. Pour résoudre ce problème, la température maximale du liquide est adaptée. Les résultats ainsi obtenus sont présentés par la figure 5.41.

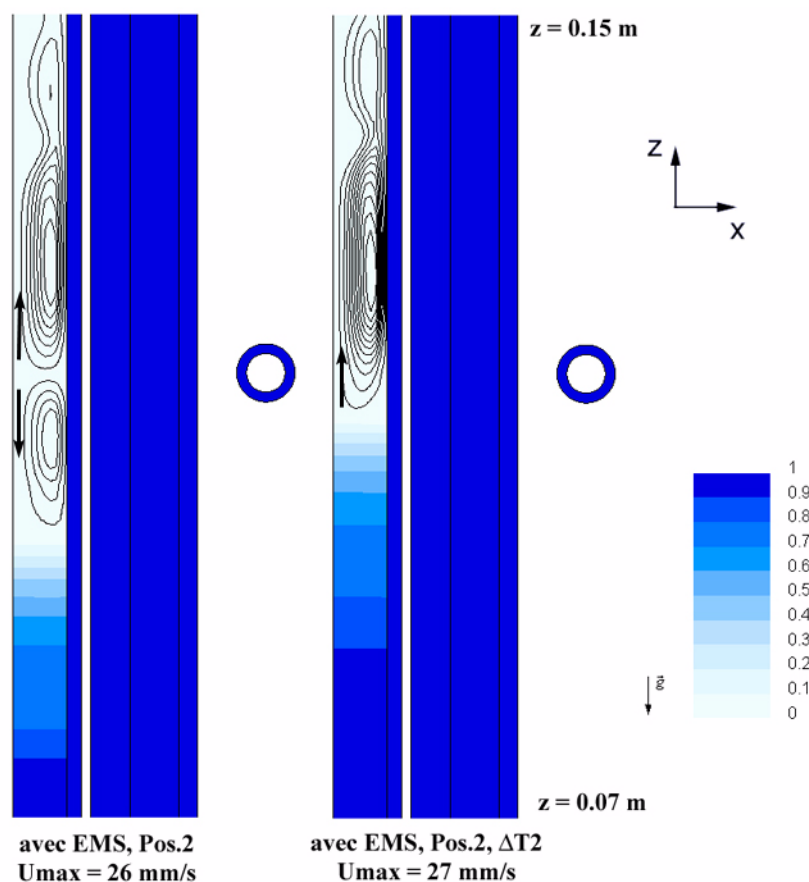


Figure 5.41 : Résultats de simulation pour l'alliage BZ4 avec EMS, pour deux températures maximales du liquide différentes (1210 et 1140 °C) et pour la même position de l'inducteur. La fraction de solide est représentée par les graduations bleues, les courants de convection sont illustrés par les lignes de courant dans le liquide, avec indication de la vitesse maximale, U_{max} .

Comme dans le cas du C97, le rapprochement de l'inducteur du liquidus induit, cette fois, la disparition du vortex de convection inférieur (voir la figure 5.41), à cause de l'écrantage du champ magnétique par le métal solide.

Les profils de fraction de solide et de température, pour l'ensemble des conditions présentées, sont donnés à la figure 5.42. L'introduction d'un brassage électromagnétique pendant la coulée de l'alliage BZ4 homogénéise la température. On voit nettement l'échauffement du liquide sur la figure 5.42(b). Cet échauffement induit un déplacement de l'interface vers le bas de façon beaucoup plus marqué que pour l'alliage C97. Remarquons que le changement de position de l'inducteur n'a d'influence que sur le mode de convection, déplaçant simplement les vortex de convection. Comme attendu, le changement de la température maximale du liquide rapproche l'interface de l'inducteur.

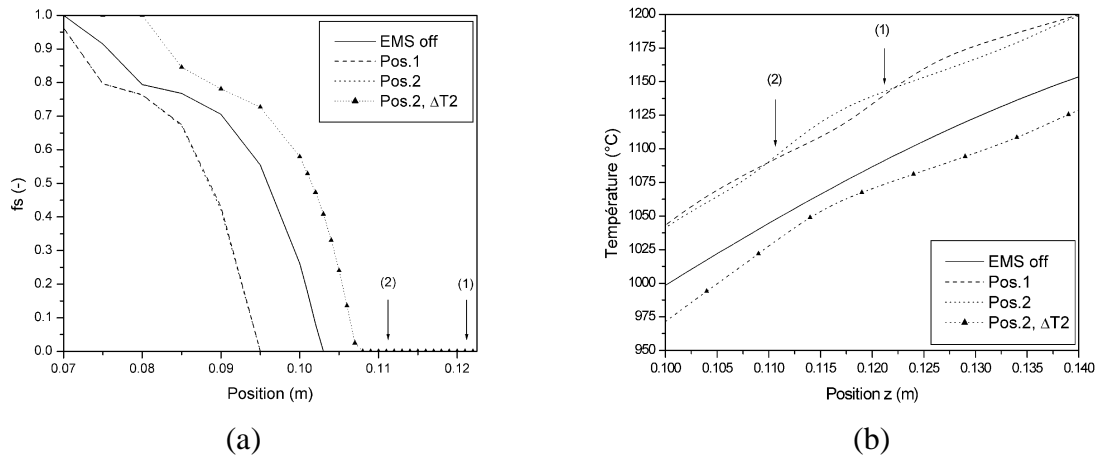


Figure 5.42 : Profils de la fraction de solide (a) et de température (b) pour l'alliage BZ4. Rappelons que le bas de l'échantillon est à la position $z = 0$. Les numéros (1) et (2) correspondent à la position (1) et (2) de l'inducteur, respectivement.

Les tendances obtenues par simulation numérique se rapprochent donc de celles observées lors des expériences en laboratoire. L'hypothèse concernant la source des changements de pentes observés sur les courbes de refroidissement expérimentales, se confirme. La position de l'inducteur par rapport au liquidus influence le mode de convection : à deux vortex de part et d'autre de la position de l'inducteur, et à un vortex positionné au dessus de l'inducteur. La convection ayant un effet sur la répartition de la température, ces mouvements de convection sont observables directement sur les courbes de refroidissement.

MÉCANISMES D’AFFINAGE DE STRUCTURES DE GRAINS PAR ACTION D’UN CHAMP MAGNÉTIQUE



Dans cette partie, diverses tendances (déterminées par les essais expérimentaux) seront étudiées dans le but de caractériser les différents phénomènes qui sont responsables de l’affinage des grains, lors du brassage électromagnétique des alliages cuivreux. Les investigations seront concentrées sur l’effet de la convection forcée sur la croissance dendritique et sur la caractérisation de l’influence des conditions expérimentales. A partir de ces constatations, différents critères seront définis, afin de prédire les conditions d’affinage des grains.

Remarquons que cette étude des mécanismes d’affinage est principalement basée sur les résultats obtenus en solidification Bridgman, les conditions de coulée industrielles étant trop complexes pour en déduire des phénomènes de manière précise. On n’exclura pas, cependant, de faire quelques parallèles.

6.1. CROISSANCE DENDRITIQUE SOUS CONVECTION FORCÉE

L’étude de l’effet de la convection forcée sur la croissance dendritique est un vaste et très complexe sujet. Dans notre cas, le phénomène qui nous intéresse est la fragmentation des dendrites induite par cette convection. Conceptuellement, cette fragmentation est due à l’apport de liquide chaud ou riche en soluté (si $k < 1$) dans les régions interdendritiques. Pour rendre compte de cet apport de liquide, on définit la notion de perméabilité de la zone pâteuse. Nous limiterons donc notre étude à l’effet de la perméabilité de la zone pâteuse sur la croissance dendritique, sous convection forcée.

6.1.1. Notion de perméabilité

Cette perméabilité, qui est d’ailleurs utilisée pour résoudre l’équation de Navier-Stokes lorsqu’on considère un milieu bi-phasé, est un terme qui permet de pénaliser la vitesse du liquide, lorsque le milieu devient de plus en plus solide (pour les détails voir le chapitre 3 et la référence [114]). A l’aide de la relation (3.13), il est possible de calculer cette perméabilité pour les deux alliages considérés. L’évolution de la fraction de solide, qui a été utilisée pour déterminer la per-

méabilité, correspond à celle mesurée par SPTA. Il a été vu que cette évolution est différente pour les alliages C97 ou BZ4. En effet, la pente beaucoup plus raide observée dans le cas du système C97, signifie que, pour le même gradient thermique, la microstructure est plus compacte que celle de l’alliage BZ4 (fig. 6.1).

Pour le calcul de la perméabilité, l’espacement des bras secondaires de dendrites correspond à celui mesuré en fin de solidification, pour les deux alliages. Il aurait été plus rigoureux de prendre en compte l’évolution de cet espacement secondaire avec la fraction de solide (maturation). Cependant, seule la comparaison entre les deux alliages nous intéresse, on peut donc considérer que la différence de λ_2 entre les alliages C97 et BZ4 reste constante. Les valeurs utilisées sont respectivement de 70 et 43 μm , pour les alliages C97 et BZ4. La figure 6.2 montre les résultats des calculs de la perméabilité selon la relation de Carman-Kozeny (équation (3.13)). L’évolution de cette dernière a été étudiée avec la distance du liquidus. C’est à dire qu’aux valeurs positives de cette distance, correspond l’intérieur de la zone pâteuse ($f_s > 0$), le liquidus correspondant à la valeur $f_s = 0$. Pour cela, l’axe des abscisses a été remplacé par la distance par rapport au liquidus, en considérant un gradient thermique égal à 3400 $^{\circ}\text{C}/\text{m}$ et les températures du liquidus égales à 1081 et 1012 $^{\circ}\text{C}$, pour l’alliage C97 et BZ4, respectivement.

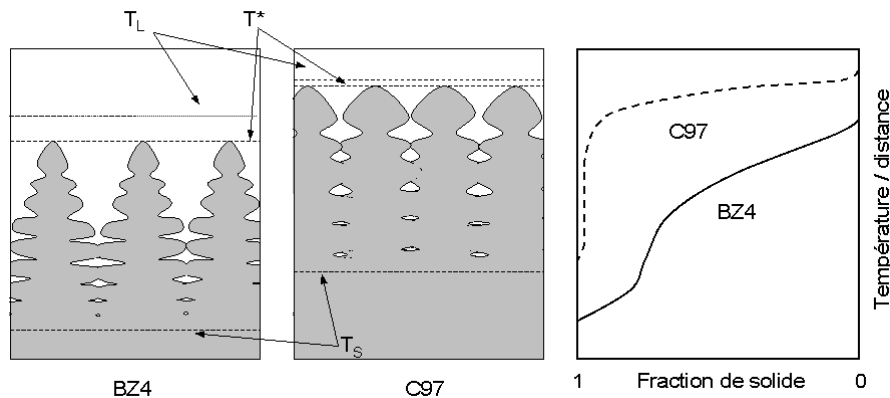


Figure 6.1 : Illustration schématique de la correspondance entre la microstructure et la fraction de solide. Remarquons que la surfusion en avant du front de croissance a été volontairement exagérée pour mettre en évidence la différence de composition entre les deux alliages.

A partir de ces courbes d’évolution de la perméabilité dans la zone pâteuse, on peut déduire que l’alliage C97 est beaucoup moins perméable que l’alliage BZ4. En effet, à 10 mm de la position du liquidus dans la zone pâteuse, la perméabilité calculée est de 10^{-13} et de $9 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ pour les alliages C97 et BZ4, respectivement.

On peut d’ailleurs considérer que les vitesses de convection sont freinées de manière importante à partir de valeurs de la perméabilité comprises entre 10^{-8} et 10^{-9} m^2 [115]. Donc, pour une même valeur de K , 10^{-9} m^2 , à laquelle la vitesse pourrait être considérée comme nulle, la pénétration du liquide dans la zone pâteuse, d_L , est plus de deux fois plus grande pour l’alliage BZ4 ($d_L = 0.9 \text{ mm}$), que pour l’alliage C97 ($d_L = 0.4 \text{ mm}$) (fig. 6.2). En considérant, qui plus est, les espacements secondaires des bras de dendrites, ceci signifie que la convection a lieu sur $6\lambda_2$ pour l’alliage C97 et $22\lambda_2$ pour l’alliage BZ4.

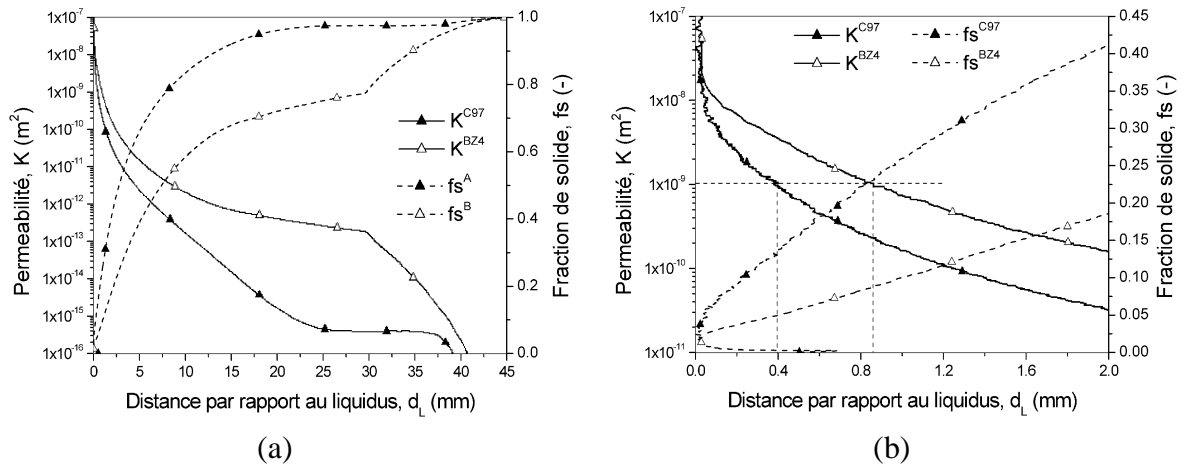


Figure 6.2 : Evolution de la fraction de solide dans la zone pâteuse et de la perméabilité correspondante (calculée par la relation (3.13)), pour les alliages C97 et BZ4. Ces courbes d'évolution sont représentées dans la zone pâteuse (a) et proche du liquidus (b)

6.1.2. Vitesse du liquide au voisinage du liquidus

Les mouvements de convection sont donc relativement différents, si on considère un domaine monophasé (la partie complètement liquide du métal), et un domaine biphasé (la zone pâteuse). Dans le but d'étudier cette convection proche du liquidus, des simulations numériques ont été réalisées sur une cavité cylindrique représentative, dans laquelle il y a coexistence de 3 domaines, liquide, pâteux et solide. Un champ magnétique est alors appliqué à cette cavité, pour créer des mouvements de convection. Les conditions aux limites sont simples (fig. 6.3) :

- la géométrie est axisymétrique, la cavité étant cylindrique de 20 mm de rayon et 40 mm de hauteur;
- sur l'axe de symétrie et les parties externes supérieure et inférieure, les surfaces sont adiabatiques;
- à la surface de l'échantillon, un gradient thermique de 10^3 K/m est imposé, en fixant la température en haut de la cavité à $T_L + 70$ °C;
- le matériau utilisé correspond aux alliages C97 ou BZ4;
- la puissance d'induction est fixée à 5 kW, à une fréquence de 1 kHz.

Les résultats obtenus sont illustrés sur la figure 6.4. Les mouvements de convection sont représentés par des lignes de courant, le sens du courant étant indiqué par le sens de chaque flèche. Le dégradé de bleu correspond à la visualisation de la fraction de solide. Dans la suite de cette étude, nous distinguerons la convection dans le liquide et dans la zone pâteuse.

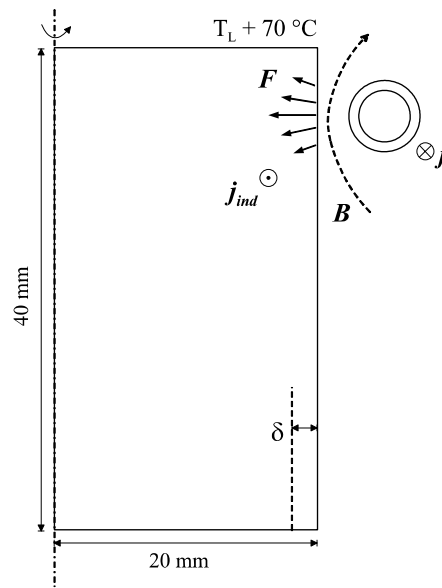


Figure 6.3 : Schéma illustrant la cavité représentative utilisée pour les simulations numériques.

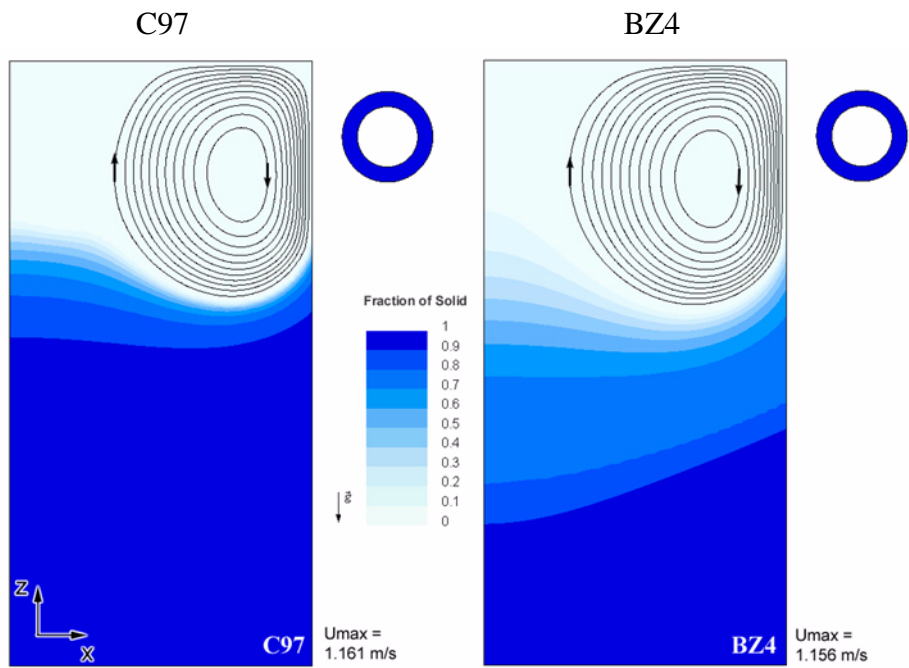


Figure 6.4 : Résultats de simulation pour les alliages C97 ou BZ4 avec EMS. La fraction de solide est représentée par les dégradés de bleu, les mouvements de convection par les lignes de courant dans le liquide, et par la vitesse maximale U_{max} .

Convection dans le liquide

La convection dans le liquide, représentée sur la figure 6.4, montre un comportement quasiment identique pour les deux alliages. Les courants de convection ont une répartition similaire, les vitesses maximales calculées sont de 1.161 et 1.156 m/s, pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. Comme attendu, l'écoulement est turbulent, les nombres de Reynolds calculés étant d'environ $5 \cdot 10^5$ pour les deux alliages. Les lignes de courant sont également plus serrées à la surface du lingot pour l'alliage C97, ce qui est dû à une profondeur de pénétration plus faible (la conductivité électrique de l'alliage C97 étant plus élevée que celle de l'alliage BZ4). Remarquons d'ailleurs, que les résultats obtenus lors de la simulation numérique sont qualitatifs, puisque la modélisation de la convection n'incorpore pas de modèle turbulent.

Il est néanmoins possible de faire quelques comparaisons. Au voisinage du liquidus, le terme de friction dans l'équation de Navier-Stokes pénalise fortement la valeur de la vitesse du fluide. La figure 6.5 montre le profil de vitesse vertical qui a été calculé le long de la cavité. Ce profil a été choisi proche de la surface externe de la cavité. La présence d'un domaine biphasé (zone pâteuse) induit donc une diminution importante de la convection proche du liquidus. La valeur de la vitesse du fluide passe de 0.9 m/s à moins de 0.1 m/s lorsque le liquidus est atteint.

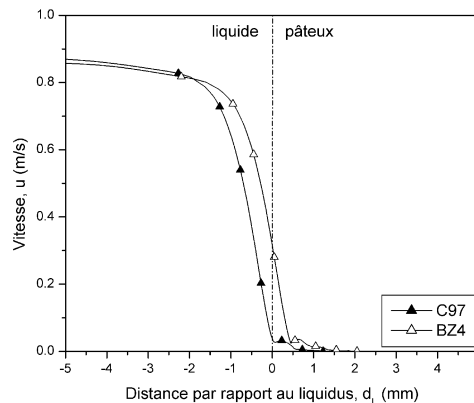


Figure 6.5 : Profil de vitesse du fluide déduit des résultats de simulation, pour les alliages C97 et BZ4 dans une région proche du liquidus. Le liquidus se trouve à la position $d_L = 0$, les valeurs négatives correspondant à une augmentation de z (liquide) et les valeurs positives à une diminution de z (zone pâteuse).

Convection dans la zone pâteuse

La figure 6.5 met également en évidence que, dans la région biphasée, les vitesses du fluide sont non nulles, comme on peut le constater sur l'agrandissement de la figure 6.6. Dans les conditions de cette simulation numérique, la pénétration du champ de vitesse dans la zone pâteuse est pratiquement deux fois plus importante dans le cas de l'alliage BZ4, 2.2 mm, que pour le C97, 1.2 mm. Il est important de noter qu'ici, la pénétration du champ de vitesse dépend uniquement de l'alliage considéré (perméabilité), puisque les vitesses de convection maximales dans le liquide sont identiques pour les deux alliages.

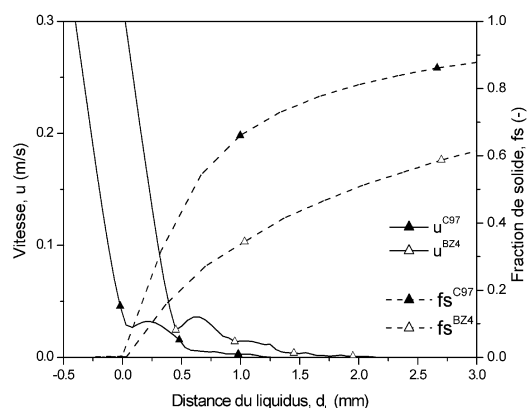


Figure 6.6 : Profil vertical de vitesse et de fraction de solide en fonction de la position du liquidus, pour les deux alliages considérés. Remarquons que le maillage a été affiné dans la zone pâteuse, dix points séparant deux symboles (triangles).

On peut donc en conclure que dans des conditions expérimentales identiques, le liquide pénètre plus facilement dans la zone pâteuse de l’alliage BZ4. On peut s’attendre alors à ce que la fragmentation par refusion locale des bras de dendrites soit plus effective pour cet alliage, phénomène qui se vérifie expérimentalement. Ce phénomène de pénétration du liquide dans la zone pâteuse sera détaillé dans le paragraphe 6.3.2.

Ces calculs confirment les valeurs des perméabilités critiques ($\sim 10^{-9} \text{ m}^2$) déterminées par Jalandi [115] pour lesquelles la vitesse du liquide est quasi nulle.

6.2. CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

6.2.1. Mesures de température

Les essais instrumentés de coulée Bridgman, avec ou sans brassage, ont mis en évidence un échauffement au liquidus, similaire à un phénomène de recalescence. Ce phénomène a été attribué à un réchauffement localisé au thermocouple, dû à la contraction du solide au cours de la solidification, ce qui est bien sûr très différent d’une recalescence.

Lors de la coulée d’alliages métalliques, la solidification induit une contraction de la partie solide. Les contacts thermiques entre l’échantillon et son creuset, diminuent fortement à l’état solide, de par la présence d’une lame d’air isolante. Ce phénomène a également lieu dans notre cas, le contact entre le métal solide et le quartz étant beaucoup moins bon que lorsque l’échantillon est liquide.

Un second phénomène vient s’ajouter à ce dernier. En effet, les mesures de températures sont effectuées par un thermocouple, qui est lui-même protégé par une gaine céramique (fig. 6.7). Lors de la contraction du métal au cours et après solidification, l’alliage solide comprime la gai-

ne de protection du thermocouple. Il arrive d'ailleurs très souvent que, sous ces tensions mécaniques, la gaine de thermocouple casse. On peut donc considérer que le contact thermique est alors amélioré.

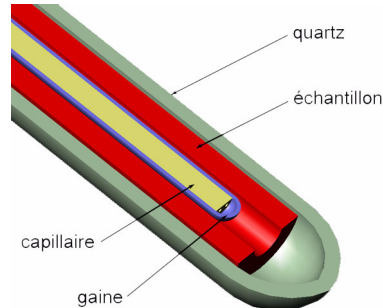


Figure 6.7 : Illustration du dispositif permettant la mesure de la température au cours des essais Bridgman. Le tube capillaire (qui permet aux fils du thermocouple d'être isolés entre eux) est inséré dans un tube de protection en céramique. La soudure des fils de thermocouple est au bout du capillaire et touche la gaine.

Lors de la solidification des alliages, la "qualité" du contact entre l'échantillon et le tube de quartz est donc diminuée alors qu'entre l'échantillon et le thermocouple, elle est augmentée. Du point de vue du thermocouple, lorsque l'échantillon devient solide, la température mesurée devient donc plus proche de celle du métal environnant puisque le contact thermique est supérieur. Ceci peut expliquer le réchauffement observé sur les courbes de refroidissement des essais Bridgman (§ 5.3.3).

Dans le but de valider cette interprétation, le dispositif de coulée Bridgman avec mesure de température a été simulé. La figure 6.8 représente la géométrie et les conditions utilisées. Le système est axisymétrique. L'échantillon de 11 mm de diamètre est inséré dans un tube en quartz. Le thermocouple est modélisé par une bille en platine de 0.35 mm de diamètre, ne tenant pas compte de la gaine céramique qui protège le thermocouple (le thermocouple est directement en contact avec le métal). Pour simplifier le problème, le gradient thermique (déterminé à partir des données expérimentales), a été imposé sur la face externe du tube de protection du four en alumine. Pour retranscrire le mouvement de l'échantillon qui descend dans le four au cours du temps, le gradient thermique se trouve translaté vers le haut à une vitesse correspondant à la vitesse de descente dans le four (4 mm/min). Le contact thermique aux interfaces échantillon/quartz et échantillon/thermocouple est implémenté, en choisissant deux valeurs du coefficient de transfert thermique à l'état solide (défini à partir de $f_s = 0.1$) et liquide, pour chaque interface.

Dans le cas de l'interface échantillon/quartz, le coefficient de transfert thermique, lorsque l'échantillon est liquide ou solide, est fixé à 5000 et 200 $\text{Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$, respectivement (noté $h(2)$ sur la fig. 6.8). Les valeurs choisies pour l'interface échantillon/thermocouple sont fixées à 200 $\text{Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$, lorsque l'échantillon est liquide (la céramique est un isolant thermique) et à 500 $\text{Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$, lorsque l'échantillon est solide (noté $h(1)$ sur la fig. 6.8). L'évolution de la température du thermocouple (noté TC) et de l'échantillon est représentée sur la figure 6.9. Un réchauffement du thermocouple est effectivement observé, reproduisant les mesures expérimentales. Il

est à noter que $h(1)$ a une influence importante sur ce réchauffement. Même pour des valeurs très peu différentes de $h(1)$, le réchauffement est observé tant que $h(1)$ solide est supérieur à $h(1)$ liquide.

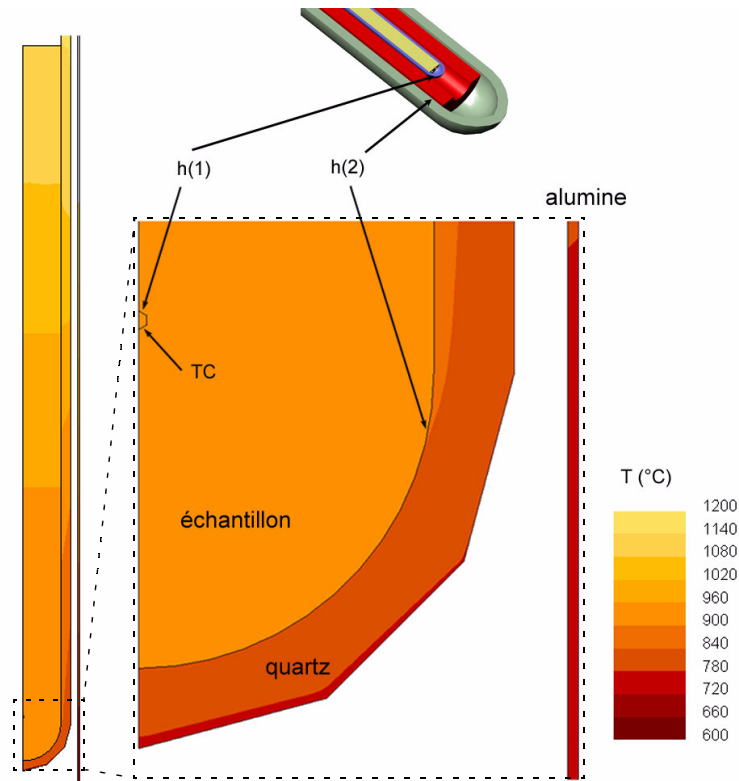


Figure 6.8 : Représentation schématique de la géométrie utilisée lors des calculs de simulation du refroidissement de l'échantillon. La température est représentée au temps final, c'est à dire lorsque la majeure partie de l'échantillon est solide.

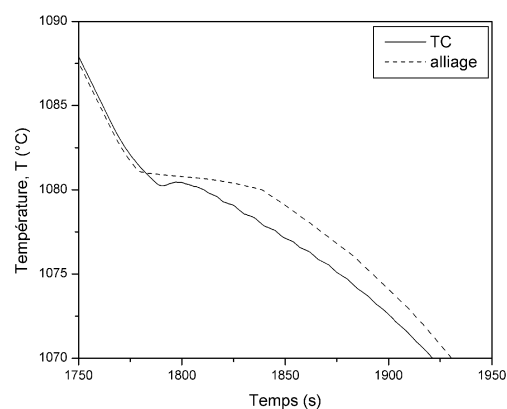


Figure 6.9 : Evolution de la température avec le temps, calculée pour le thermocouple TC et pour l'échantillon (à la même auteur que le thermocouple).

Remarquons que la chaleur latente libérée, proche du liquidus et résultant en un plateau de température dans l'échantillon, n'influence que très peu la mesure par le thermocouple. Ceci s'explique principalement par le fait que, malheureusement, la gaine céramique entourant le thermocouple est un bon isolant thermique. Ces constatations s'appliquent également aux essais expérimentaux.

6.2.2. Optimisation des procédés

Il a été observé, dans le chapitre précédent, que les deux principaux paramètres agissant de façon importante sur l'affinage de grains, sont la puissance d'induction et la distance entre l'inducteur et le liquidus. Etudions en détail l'effet de ces facteurs dans le cas de la solidification de type Bridgman.

Puissance d'induction

Dans le but de caractériser l'effet de la puissance d'induction sur l'évolution thermique du matériau, les courbes de refroidissement mesurées expérimentalement ont été dérivées par rapport au temps.

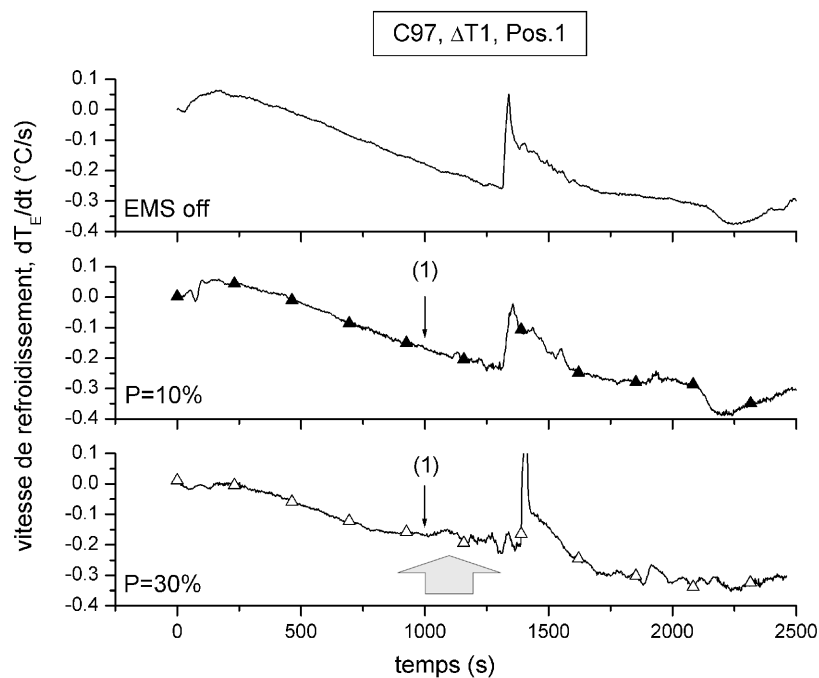


Figure 6.10 : Courbes de vitesse de refroidissement pour l'alliage C97, lorsque l'inducteur est en position (1), sans brassage électromagnétique (haut), avec brassage électromagnétique à une puissance de 10% (milieu) et de 30% (bas).

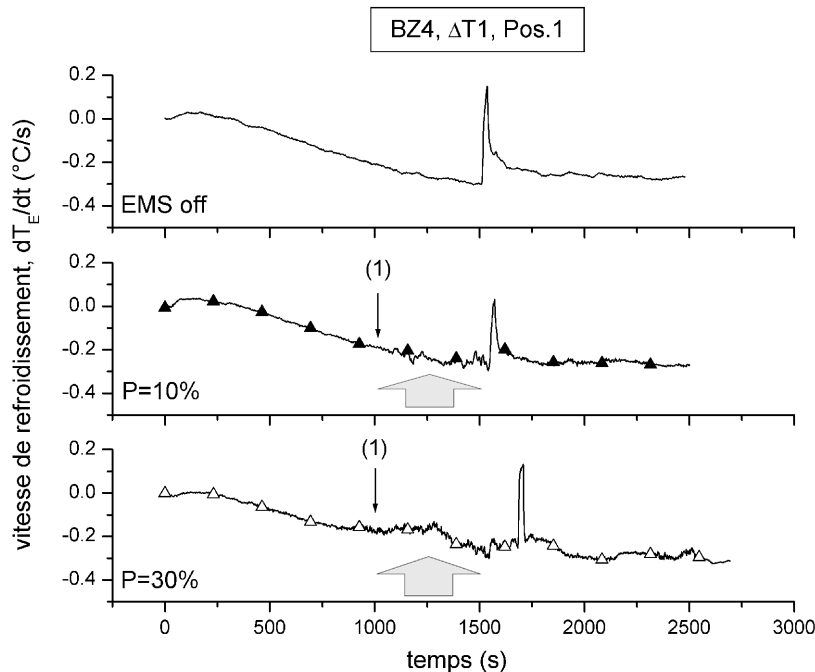


Figure 6.11 : Courbes de vitesse de refroidissement pour l’alliage BZ4, lorsque l’inducteur est en position (1), sans brassage électromagnétique (haut), avec brassage électromagnétique à une puissance de 10% (milieu) et de 30% (bas)

Cette forme dérivée des courbes $T(t)$ permet de mettre en évidence les changements de la vitesse de refroidissement, caractérisant l’effet des mouvements de convection dans le liquide. La position du liquidus est également facilement repérable sur ces dérivées. Les figures 6.10 et 6.11 présentent les courbes de vitesse de refroidissement pour différentes puissances d’induction, à la position (1) de l’inducteur, à ΔT_l et pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. Remarquons que sur ces figures et les suivantes, les flèches grisées indiquent la position du réchauffement du liquide.

Les résultats obtenus confirment les interprétations qui ont été déduites des résultats expérimentaux. En effet, il semble se vérifier que plus la puissance d’induction augmente, plus les mouvements de convection du liquide sont importants, pour les deux alliages. Ce phénomène est d’autant plus marqué que dans le cas de l’alliage BZ4, un réchauffement localisé du liquide est observé pour une puissance d’induction de 30% (variation positive de la courbe dT_E/dt). Par contre, on remarquera que pour l’alliage C97 à une puissance de 10%, pratiquement aucune diminution de la vitesse de refroidissement n’apparaît dans le liquide, la convection et l’effet joule sont donc très faible. La position du liquidus change également avec la puissance d’induction. Ce phénomène est attribué à l’augmentation de la convection dans le liquide qui homogénéise d’avantage la température proche de l’interface, ainsi qu’au réchauffement du métal par effet joule. L’interface est donc repoussée.

Distance inducteur - liquidus

L'effet de la position de l'inducteur sur la vitesse de refroidissement est présenté sur les figures 6.12 et 6.13, pour les alliages C97 et BZ4, respectivement (puissance 30%, ΔT_l pour l'alliage C97 et ΔT_2 pour l'alliage BZ4, position (1) et (2)). Comme pour l'effet de la puissance d'induction, l'observation des courbes de refroidissement conforte les interprétations, réalisées dans le chapitre précédent, sur l'effet du rapprochement de l'inducteur vers le liquidus. Les mouvements de convection dans le liquide sont alors plus proches du liquidus dans la position de l'inducteur (2). Dans ce cas, les mouvements de convection semblent pénétrer la zone pâteuse, la vitesse de refroidissement étant constante dans cette région. Dans certains cas, on notera également un réchauffement léger au liquidus.

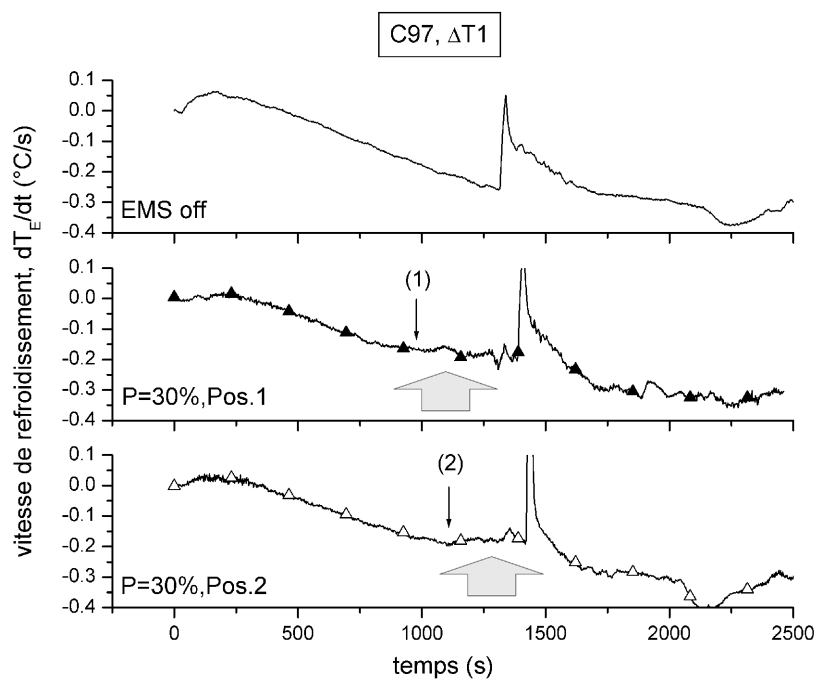


Figure 6.12 : Courbes de vitesse de refroidissement pour l'alliage C97, pour différentes positions de l'inducteur, avec une puissance de brassage de 30%. Les courbes obtenues sont comparées à celle mesurée sans brassage (haut).

Remarquons que, dans le but de comparer les résultats obtenus pour les alliages C97 et BZ4, la différence de température entre le liquide et le liquidus a été choisie égale à ΔT_2 , pour le BZ4 (distance inducteur - liquidus identique).

D'ailleurs cette différence de température, ΔT_2 , est un paramètre important pour l'alliage BZ4 puisqu'il permet de retrouver la distance inducteur - liquidus obtenue dans le cas du C97 à ΔT_l . Les mouvements de convection se retrouvent donc encore plus proches de l'interface, agissant de manière plus efficace sur l'évolution de la température dans la zone pâteuse. Pour mettre en évidence l'effet de la diminution de cette différence de température, dans le cas de l'alliage BZ4 (puissance 30%, position (1)), la figure 6.13 (milieu) peut être comparée à la figure 6.11 (bas).

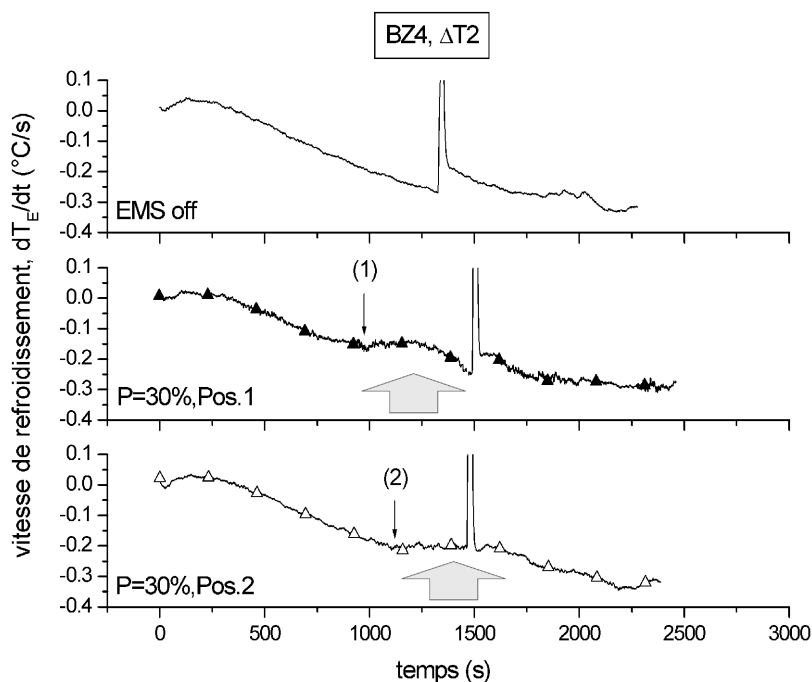


Figure 6.13 : Courbes de vitesse de refroidissement pour l’alliage BZ4, pour différentes positions de l’inducteur, avec une puissance de brassage de 30%. A noter que la différence de température entre la température maximale du liquide et celle du liquidus est ΔT_2 , dans ce cas (voir chapitre précédent). Les courbes obtenues sont comparées à celle mesurée sans brassage (haut).

Contrôle de la microstructure par l’instrumentation

L’instrumentation des essais de solidification peut permettre de déterminer de bonnes conditions pour un affinage de la structure. Les informations à déduire de ces instrumentations sont focalisées sur l’optimisation du procédé de brassage électromagnétique et l’amélioration de l’efficacité de l’affinage. Les conditions d’affinage peuvent être déterminées, à partir des dérivées des courbes $T(t)$: lorsque les mouvements de convection sont localisés sur la zone pâteuse, l’affinage a lieu. Ces conditions correspondent au cas de l’alliage C97 solidifié à ΔT_1 , avec l’inducteur en position (2) et au cas de l’alliage BZ4, solidifié à ΔT_2 , avec l’inducteur en position (2) (voir les figures 5.27, 6.12 et 5.26(a) et (b), correspondant aux courbes $T(t)$, dT/dt et aux structures affinées obtenues, respectivement).

En résumé, la distance inducteur - liquidus doit être réduite pour augmenter l’efficacité du brassage. L’effet de la diminution de cette distance a clairement été montrée : les mouvements de convection sont concentrés sur la zone pâteuse, favorisant la refusion des bras de dendrites et donc l’affinage.

Cependant, les différences concernant l’optimisation de l’affinage entre les alliages C97 et BZ4, même lorsque le brassage est localisé proche de l’interface, sont importantes. La notion de perméabilité apparaît donc comme un facteur primordial. Il a été vu précédemment que l’évolution de la perméabilité de l’alliage C97 avec la température (ou avec la distance dans un gradient fixe), signifie une zone pâteuse beaucoup plus compacte que celle de l’alliage BZ4. On

peut donc en déduire que la pénétration du liquide dans la zone pâteuse pilote véritablement l'efficacité de l'affinage de la structure.

6.2.3. Vitesse et mode de tirage

L'augmentation de la vitesse de tirage modifie la forme des isothermes. Lors des essais industriels, celles-ci sont d'ailleurs très incurvées, les vitesses de coulées étant de l'ordre de plusieurs centaines de millimètres par minute. Dans le cas des expériences de solidification de type Bridgman, des isothermes incurvées ont pu être observées à des vitesses de 30 mm/min, sachant que, pour des vitesses couramment employées de 4 ou 8 mm/min, les isothermes sont planes (voir le paragraphe 5.3.3). L'effet de cette augmentation de la vitesse de tirage est important. Comme il a déjà été observé dans le chapitre précédent, à 30 mm/min, la tendance à l'affinage est beaucoup plus marquée pour les deux alliages, avec une taille de grain diminuée et une meilleure homogénéité. Remarquons que l'inclinaison des isothermes modifie la direction de croissance des dendrites. On exprime alors la vitesse de croissance des isothermes, V_T , par la relation suivante : $V_T = V_c \cos \theta$, où θ est l'angle entre le gradient thermique à l'interface et la direction de tirage (fig. 6.14). L'augmentation de la vitesse de coulée a deux effets principaux : elle accroît la surfusion à la pointe de la dendrite (voir paragraphe 6.3.4), même si cet accroissement est limité par l'inclinaison des isothermes, et elle modifie l'écoulement du liquide au voisinage du liquidus (fig. 6.14).

On peut donc penser que si un fragment se détache et est emporté par la convection, il aura plus de chance de survivre pour une vitesse de tirage accrue, puisqu'il restera plus longtemps dans des régions interdendritiques.

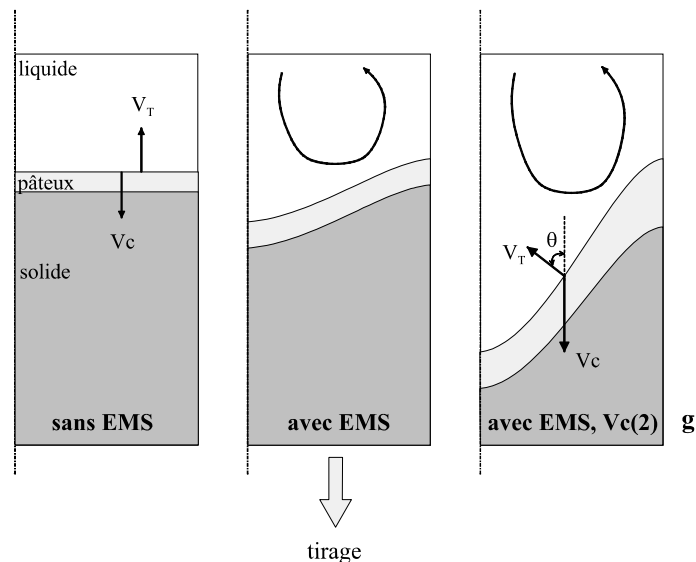


Figure 6.14 : Morphologie de l'interface solide-liquide sans EMS, avec EMS et avec EMS à une vitesse de tirage plus importante (notée $V_c(2)$ sur le schéma).

Ce phénomène est d'ailleurs accentué lors des coulées en industrie, puisque ajouté à la courbure des isothermes due aux vitesses de tirage, le mode de tirage par avance-stop-recul-stop fa-

vorise la fragmentation. Même si les expériences menées en laboratoire sur l’influence de ce mode de tirage n’ont pas donné de résultats significatifs, cette déstabilisation supplémentaire de l’interface crée un état transitoire à chaque étape du cycle de tirage. Or, on peut penser que l’état transitoire augmente l’affinage de grain. Donc, sur l’ensemble du cycle, la succession d’états transitoires ne peut que favoriser la fragmentation et la durée de vie des fragments. Il faut également remarquer que le recul va induire la refonte partielle du réseau dendritique, créant ainsi d’avantage de fragments.

6.3. MÉCANISMES ET PRÉDICTION DE L’AFFINAGE DE GRAINS

Malgré la complexité des nombreux phénomènes qui caractérisent la solidification sous brassage électromagnétique, cette partie va tenter d’expliquer les mécanismes et de déterminer un critère de prédiction de l’affinage de grain.

Pour rendre compte de l’effet de la convection forcée sur la solidification, on définit plusieurs phénomènes à différentes échelles. Ces derniers sont basés sur l’effet de la convection sur le gradient thermique à l’interface, la caractérisation de l’écoulement du liquide sous champ magnétique, à l’échelle macroscopique, et la refusion des bras de dendrites et leur transport, à l’échelle microscopique.

Il a été vu précédemment que les conditions optimales pour un affinage efficace de grains sont de localiser la convection sur le front de solidification et de favoriser la survie des fragments ainsi créés. A partir des différentes étapes qui constituent l’affinage de grains, nous avons donc respectivement étudié les phénomènes liés à la fragmentation des bras de dendrite, à la survie des fragments ainsi qu’au transport de ces derniers. En effet, la sédimentation et la croissance de la structure équiaxe n’ont pas été considérées. On peut alors considérer que la fragmentation peut être causée par une diminution de gradient thermique au voisinage du liquide et/ou par la pénétration du liquide dans la zone pâteuse. De son côté, la survie des fragments est également liée à la vitesse du liquide interdendritique mais certainement aussi à l’étendue de la zone en surfusion en avant du front de solidification.

6.3.1. Transition colonnaire-équiaxe

Dans le but d’étudier l’effet de la diminution du gradient thermique sur l’affinage, le modèle de transition colonnaire-équiaxe a été utilisé dans un premier temps.

La transition colonnaire-équiaxe selon le modèle de Hunt [6] est basée sur la germination de grains dans la zone en surfusion en avant du front de solidification colonnaire. Ce modèle ne prend donc pas en compte la convection dans le liquide et l’effet qu’il peut avoir sur cette zone de surfusion colonnaire autre que les changements de gradient thermique (la fragmentation n’est pas considérée). Cependant, cette prédiction de la transition CET donne une indication importante. En effet, comme déjà discuté auparavant, l’étendue de la zone en surfusion en avant du front colonnaire est plus importante pour l’alliage BZ4. Notons que cette surfusion colonnaire

a été déterminée en utilisant le modèle KGT appliqué aux alliages multicomposés (voir § 6.3.4). Les fragments formés auront donc plus de chance de survivre. Ce phénomène se retranscrit par un domaine équiaxe plus important sur la carte de microstructure calculée, pour les deux alliages (fig. 6.15). Cette carte de microstructure a été déterminée en utilisant le modèle de Hunt, appliqué à nos alliages (ce modèle a été décrit dans les chapitres 2 et 3). Seules les limites correspondant à la transition colonnaire - complètement équiaxe sont montrés sur cette carte. En effet, la zone mixte définie par Hunt n’est pas reportée, puisque seuls des échantillons entièrement équiaxes sont désirés.

La particularité de ce modèle est qu’il fait intervenir le nombre de sites de germination par unité de volume, N_0 , ainsi que la surfusion de germination, ΔT_m . La difficulté réside dans le choix de ces paramètres. Il a donc été considéré, dans un premier temps, que tous les sites de germination ont donné naissance à un grain équiaxe. N_0 a donc été estimé en dénombrant le nombre de grains équiaxes par unité de volume, sur une coupe longitudinale de nos échantillons, par une méthode simple : les grains ayant été assimilés à des sphères, N_0 est donc calculé en divisant le nombre de grains mesuré par la surface qu’ils occupent [119]. Remarquons que le nombre de grain est déterminé par l’analyse EBSD qui a été réalisée sur les échantillons industriels affinés, les échantillons Bridgman n’ayant pas une taille de grain suffisamment homogène. Les nombres de grains par unité de volume ont alors été calculés à partir des résultats EBSD obtenus au paragraphe 5.3.2 (voir fig. 5.21), c’est-à-dire correspondant aux échantillons obtenus par coulée continue à une puissance d’induction de 6 kW et à une vitesse de tirage de 400 mm/min. Les N_0 ainsi calculés, sont respectivement de $1.9 \cdot 10^{11}$ et $1.48 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-3}$ pour les alliages C97 et BZ4. Remarquons que la détermination de N_0 selon cette méthode dépend fortement des conditions expérimentales. Nous devrions donc comparer les cartes de CET calculées à partir du N_0 correspondant à une expérience donnée. Cependant, déterminer N_0 à l’aide des échantillons Bridgman ne semble pas pertinent. En effet, le nombre de grains équiaxes formés ne correspond pas forcément au nombre de sites de germination, en particulier dans le cas des échantillons Bridgman coulés à 4 mm/min, pour lesquels l’affinage n’est pas optimal. Il n’est donc pas possible de déterminer les N_0 associés. Les interprétations seront donc réalisées en ne tenant compte que d’une seule valeur de N_0 par alliage, qui ont été déterminées précédemment. Ceci met en évidence la difficulté d’adapter ce modèle à nos conditions expérimentales.

Dans un second temps, nous considérons que les conditions de coulée sous convection forcée sont telles que la refusion des bras de dendrites est effective. La valeur de la surfusion de germination a donc été choisie égale à 0, les fragments étant assimilés aux germes.

Les points correspondant à différentes conditions expérimentales ont été placés sur la carte de microstructure calculée (fig. 6.15) :

- les conditions industrielles : $G = 7000 \text{ K/m}$, $V_c = 400$ et 100 mm/min (symboles carré et triangle), avec brassage à la puissance standard 6 kW, pour les deux alliages.
- les conditions Bridgman : alliages C97 et BZ4, $V_c = 4 \text{ mm/min}$, avec brassage à la puissance de 30% ($\sim 6 \text{ kW}$) et l’inducteur en position (2) (symboles cercle et étoile). Les valeurs mesurées du gradient thermique variant en fonction du type d’alliage, le gradient thermique est de 2600 et 3300 K/m pour les alliages C97 et BZ4, respectivement (voir

les résultats obtenus dans le chapitre 3). L’alliage C97, mêmes conditions que précédemment avec $V_c = 30$ mm/min (cercle barré).

Les tendances déterminées (fig. 6.15) suivent celles observées lors des expériences. En effet, la fenêtre de procédé définie pour obtenir une microstructure équiaxe est plus réduite dans le cas de l’alliage C97. On a pu voir que lors des coulées de type Bridgman (dans les conditions définies précédemment), l’alliage C97 reste très difficile à affiner pour des vitesses de tirage de 4 mm/min (présence de "gros" grains), alors que l’alliage BZ4 s’affine plus facilement (voir les structures obtenues sur les figures 5.26 et 5.22). Par contre, pour une vitesse de coulée de 30 mm/min, l’alliage C97 présente une structure affinée homogène (fig. 5.31(a)). Ces observations expérimentales correspondent relativement bien à la prédiction du modèle.

Cependant, en utilisant ce modèle, on aurait pu croire que les échantillons industriels coulés à une vitesse de 100 mm/min seraient équiaxes. Expérimentalement il n’en est rien (fig. 5.34). Pour les deux alliages, la position de l’inducteur par rapport au front de solidification est telle que le solide écrante le champ magnétique, diminuant fortement la convection dans le liquide.

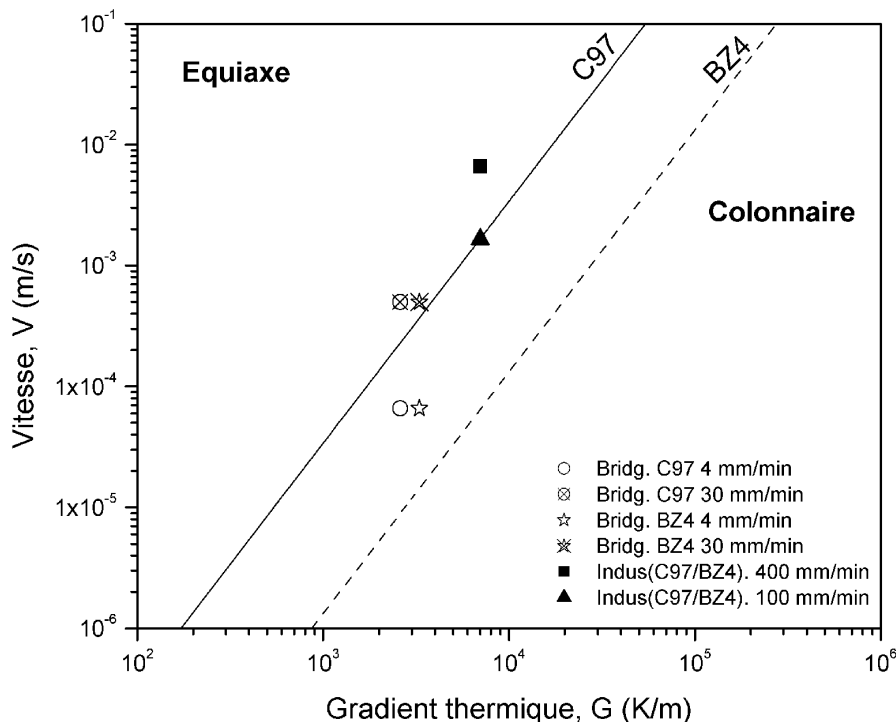


Figure 6.15 : Carte de microstructure déterminée par le modèle CET de Hunt, pour les alliages C97 (trait plein) et BZ4 (pointillés), en considérant les paramètres suivants : $\Delta T_n = 0$ K et $N_0 = 1.9 \cdot 10^{11}$ et $1.48 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-3}$ pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. Les conditions expérimentales de coulée industrielle (symboles pleins) et Bridgman (symboles ouverts) avec brassage électromagnétique (position d'inducteur (2) et puissance d'induction 30%) ont été reportées sur la carte.

Il est important de se rappeler que les paramètres N_0 et ΔT_n sont extrêmement difficiles à déterminer. Même si l’hypothèse $\Delta T_n = 0$ est raisonnable pour le cas de la fragmentation, la détermination de N_0 à l’aide de la densité des grains mesurée par EBSD, après solidification, est beaucoup plus sujet à controverse. Cela sous entend que le nombre de grains formés est identique au nombre de germes créés. Dans la réalité, certains germes n’auront pas la taille suffisante pour survivre. On peut donc raisonnablement penser que les valeurs mesurées du nombre de site de germination par unité de volume sont sous-estimées. La limite observée devrait donc être déplacée vers la droite, augmentant la zone équiaxe de la fenêtre de procédé. Par ailleurs, il est important de signaler que la dépendance du modèle de Hunt à N_0 est importante. La figure 6.16 montre l’effet important du choix de la valeur de N_0 . En effet, le modèle de Hunt a été appliqué dans les mêmes conditions que précédemment en augmentant ou en diminuant N_0 d’un facteur 10, pour les deux alliages.

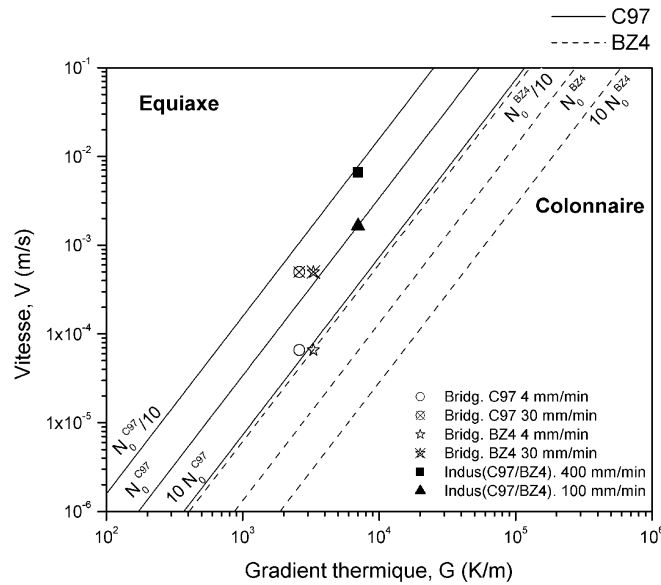


Figure 6.16 : Carte de microstructure déterminée par le modèle CET de Hunt, pour les alliages C97 (trait plein) et BZ4 (pointillés), en considérant les paramètres suivants : $\Delta T_n = 0$ K et $N_0 = 1.9 \cdot 10^{11}$ et $1.48 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-3}$ pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. La transition colonnaire-équiaxe a été recalculée pour des valeurs du nombre de sites de germination égaux à $N_0/10$ et $10N_0$, pour les deux alliages (noté N_0^{C97} et N_0^{BZ4} , respectivement). Les conditions expérimentales de coulée industrielle (symboles pleins) et Bridgman (symboles ouverts) avec brassage électromagnétique (position d’inducteur (2) et puissance d’induction 30%) ont été reportées sur la carte.

On peut donc déduire de ces observations que l’augmentation du nombre de sites de germination favorise la croissance équiaxe. La valeur de N_0 est donc fondamentale, mais difficile à estimer. Nous avons vu précédemment que la détermination de N_0 à l’aide de la densité des grains mesurée par EBSD donne des valeurs quasiment identiques pour les deux alliages ($\sim 2 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-3}$), alors qu’intuitivement on aurait pu penser que l’alliage BZ4, plus allié aurait un plus grand nombre de sites de germination. Remarquons que dans le cas de figure où le nombre de

sites de germination serait de l’ordre de $2 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-3}$ pour l’alliage C97 (noté $N_0^{C97}/10$ sur la figure 6.16), la structure devrait être colonnaire selon ce modèle lors des coulées continues et des coulées Bridgman (même optimisées, c’est-à-dire à la puissance d’induction 30%, position (2) et $V_c = 30 \text{ mm/min}$), ce qui n’est pas le cas expérimentalement.

Indépendamment de la faible diminution du gradient thermique, ce modèle ne permet pas de prendre en compte l’effet de la position de l’inducteur, effet qui s’est révélé fondamental. En effet, la figure 6.17 met en évidence l’effet de la position de l’inducteur sur le gradient thermique, pour les deux alliages. Les valeurs des gradient thermiques obtenus correspondent à ceux mesurés lors des coulées de type Bridgman avec et sans brassage électromagnétique à la puissance d’induction de 30% et pour les positions d’inducteur (1) et (2) (coulée expérimentales étudiées au chapitre précédent, se reporter au paragraphe 5.3.3). L’effet de la diminution du gradient thermique est relativement faible comparé à celui de N_0 par exemple. Remarquons que, d’après ce modèle, cette diminution n’est pas assez conséquente pour atteindre un régime de croissance équiaxe, en ce qui concerne l’alliage C97. Ce modèle reste donc assez général et peu précis. Il ne permet pas, par exemple, de prédire l’affinage de l’alliage C97 lorsqu’il est coulé à une puissance d’induction de 30% avec l’inducteur en position (2) pour la valeur N_0 considérée.

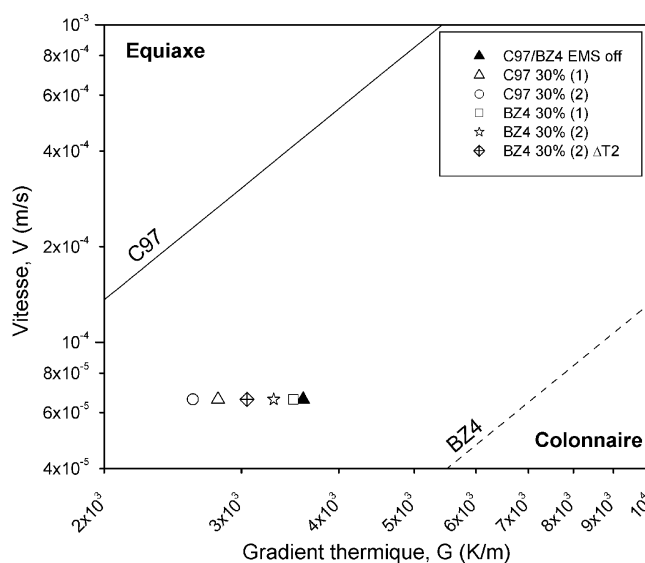


Figure 6.17 : Agrandissement de la carte de microstructure déterminée par le modèle CET de Hunt, pour les alliages C97 (trait plein) et BZ4 (pointillés), en considérant les paramètres suivants : $\Delta T_n = 0 \text{ K}$ et $N_0 = 1.9 \cdot 10^{11}$ et $1.48 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-3}$ pour les alliages C97 et BZ4, respectivement. Les conditions expérimentales de coulée Bridgman avec (symboles ouverts) et sans (symbole plein) brassage électromagnétique ont été reportées sur la carte. Se reporter aux tableaux 5.5 et 5.8 pour les valeurs des gradients thermiques.

En résumé, ce modèle de transition colonnaire-équiaxe reste un modèle qualitatif qui ne prend pas en compte l’effet de la convection, à part la diminution du gradient thermique. Or, les résultats ont montré que cette diminution de gradient thermique n’est pas le seul phénomène qui

induit l’affinage de grain. Il est alors nécessaire de définir un modèle de prédiction de la refusion des bras de dendrites basé sur l’effet de la pénétration du liquide dans la zone pâteuse. Pour cela, il est utile de caractériser dans un premier temps la création des mouvements de convection du liquide induits par la présence d’un champ magnétique.

6.3.2. Caractérisation de l’effet du champ magnétique

Dans cette partie, l’effet du champ magnétique sur les mouvements du liquide, pour les deux alliages, sera caractérisé. Notre but n’étant pas de procéder à une étude complète de MHD, les différents comportements du liquide en fonction du type d’alliage seront simplement comparés, dans le cas du procédé Bridgman.

Vitesse moyenne du fluide

Le champ magnétique alternatif induit un mouvement de liquide par l’action des forces de Lorentz. On peut définir une échelle de vitesse caractéristique du fluide, u_A , appelée vitesse d’Alfvén, en utilisant la relation suivante [46] :

$$u_A \sim \frac{B_0}{\sqrt{\mu_0 \rho}} \quad (6.1)$$

Les valeurs de ces vitesses, aux puissances utilisées expérimentalement, sont reportées sur le tableau 6.1, en utilisant la relation suivante : $B_0 = (\mu_0 NI)/D$, N étant le nombre de spires de la bobine d’induction, I l’intensité du courant parcourant l’inducteur et D le diamètre des spires. Remarquons que la valeur de la perméabilité magnétique est choisie comme égale à celle du cuivre pur, considérée égale à celle du vide. En effet, la susceptibilité magnétique du cuivre pur étant de $\chi = 0.98 \cdot 10^{-5}$ [116], d’après la relation $\mu_{Cu} = \mu_0(1 + \chi)$, la perméabilité magnétique du cuivre μ_{Cu} peut donc être considérée équivalente à celle du vide.

Tableau 6.1: Calcul de l’intensité moyenne du champ magnétique et de la vitesse moyenne du fluide, pour deux différentes puissances d’induction.

P (%)	P (kW)	I (A)	f (kHz)	B_0 (mT)	u_A (mm/s)
10	2.1	91	0.8	2.2	20.8
30	5.8	141	1.5	3.4	31.2

Due à la seule spire qui constitue la bobine d’induction (géométrie qui permet de favoriser la convection dans le liquide), l’intensité du champ magnétique est relativement faible. La valeur de la vitesse d’Alfvén, u_A , calculée pour une puissance d’induction de 30% est de l’ordre de grandeur des vitesses maximales calculées par simulation numérique, c’est à dire 32 mm/s pour l’alliage C97 et 26 mm/s pour l’alliage BZ4 (voir § 5.4.2). En effet, les simulations numériques ont été réalisées avec une puissance d’induction de 6 kW et à une fréquence de 1.5 kHz, ce qui correspond approximativement aux conditions expérimentales utilisées. Remarquons que

les deux alliages ayant des masses spécifiques voisines, les vitesses d’Alfvén calculées sont pratiquement identiques à ± 1 mm/s.

Type d’écoulement et paramètre d’écran

Lors de la caractérisation des conditions de brassage expérimentales, il est important de prendre en compte la dimension de l’échantillon. Dans notre cas, cette longueur se détermine de deux façons différentes, dans la mesure où l’on prend en compte l’étendue de la zone liquide, L_z , c’est à dire la longueur verticale (axe z) de la partie liquide de l’échantillon, ou le rayon de l’échantillon, R . Sachant que la longueur des échantillons est de 150 mm et que leur rayon est de 5.5 mm, $L_z \gg R$. On peut considérer que nous sommes dans le cas d’un confinement dans un tube de rayon R .

Les nombres de Reynolds, caractérisant les conditions expérimentales, sont calculés en utilisant la vitesse d’Alfvén définie précédemment et la longueur ou le rayon de l’échantillon. En considérant la configuration du procédé, le paramètre d’écran n’a de sens que s’il est calculé avec le rayon de l’échantillon comme longueur caractéristique. De plus, la vitesse moyenne du fluide peut être estimée en fonction de la vitesse d’Alfvén et du paramètre d’écran, par la relation suivante [117] :

$$u_0 \sim u_A \left(\frac{\delta}{L} \right)^{1/2} \quad (6.2)$$

ou

$$u_0 \sim u_A \cdot R_\omega^{-1/4} \quad (6.3)$$

Rappelons que le paramètre d’écran R_ω et l’effet de peau magnétique δ ont été définis au chapitre 2 comme :

$$R_\omega = \frac{L^2}{\delta^2} \text{ et } \delta = \sqrt{\frac{2}{\mu_0 \sigma_e \omega}} \quad (6.4)$$

Le tableau 6.2 regroupe les grandeurs ou nombres adimensionnels ainsi calculés.

Tableau 6.2: Calcul du nombre de Reynolds, du paramètre d’écran et de la vitesse moyenne du fluide, pour les deux alliages, en considérant la longueur de l’échantillon, L_z , ou son rayon, R . La puissance d’induction est de 30%.

alliages	Re_{L_z}	Re_R	$R_{\omega R}$	δ (mm)	u_0 (mm/s)
C97	$1.07 \cdot 10^5$	$3.94 \cdot 10^3$	0.72	9.19	34.9
BZ4	$1.07 \cdot 10^5$	$3.91 \cdot 10^3$	0.54	10.6	37.8

Que ce soit en considérant la longueur ou le rayon de l’échantillon, l’écoulement est turbulent. En effet, $Re_{L_z} > 10^5$ et $Re_R > 2400$ (cas d’une convection forcée dans un tube de diamètre $2R$ [118]). De par la conductivité plus faible de l’alliage BZ4, la pénétration du champ magné-

tique (peau magnétique) est plus importante que pour l’alliage C97. Le paramètre d’écran est donc également plus faible. Il est cependant à remarquer qu’à ces valeurs de fréquence, l’étendue de la peau magnétique est supérieure au rayon de l’échantillon. Cela explique en partie le sens des mouvements de convection calculés au paragraphe 5.4.2, puisque la force de Lorentz s’applique sur l’ensemble de l’échantillon. La direction normale à l’inducteur est donc la plus forte contribution de la force de Lorentz. Dans le cas de fréquences plus élevées, la peau magnétique diminue, la contribution de la force de Lorentz qui domine correspond alors aux directions quasi parallèles à la surface de l’échantillon, changeant le sens de la convection [49] (voir la figure 6.18).

Le sens des mouvements de convection est donc fonction de la fréquence et du paramètre d’écran. Des valeurs faibles de R_ω favorisent une convection dans le sens des aiguilles d’une montre pour le vortex situé au dessus de la spire d’induction (cas du procédé Bridgman, fig. 6.18(a)), alors que des valeurs importantes favorisent une convection dans le sens inverse (cas du procédé de coulée continue, la fréquence étant beaucoup plus élevée, fig. 6.18(b)).

La différence entre la valeur du paramètre d’écran calculé pour les alliages C97 et BZ4, induit une vitesse moyenne du fluide légèrement plus importante dans le cas de l’alliage BZ4.

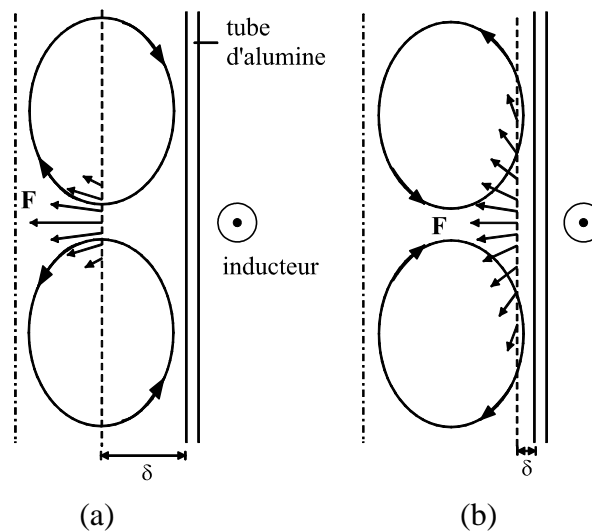


Figure 6.18 : Illustration du sens de la convection du liquide lorsque le paramètre d’écran R_ω est faible (δ grand) (a) et lorsqu’il est important (δ petit) (b).

Il est donc important de remarquer que les vitesses de convection dans le liquide étant approximativement les mêmes pour les deux alliages, ce n’est pas ce paramètre qui peut expliquer la différence d’affinage observée. De ce fait, il devient nécessaire de considérer l’affinage de grains à l’échelle de la zone pâteuse. On s’intéresse alors à la fragmentation des dendrites causée par la refusion locale des bras secondaires de dendrites.

6.3.3. Refusion des bras de dendrite

Pour qu’il puisse y avoir refusion des bras de dendrites, du liquide chaud ou riche en soluté doit être amené dans les régions de la zone pâteuse à refondre. Ce liquide devant atteindre ces régions interdendritiques pour refondre les dendrites, on parle alors de pénétration du liquide dans la zone pâteuse. Le second phénomène à prendre en compte est le mécanisme lui-même de refonte de ces bras de dendrites. Il est important de noter que cette étude est réalisée en considérant la partie solide fixe (réseau dendritique). L’effet de la présence de grains solides et leur transport n’est pas pris en compte, que ce soit l’effet sur la viscosité, leur croissance ou leur parcours. Il s’agit simplement de la création de grains par refusion des bras de dendrite. On considère alors que, du moment que la refusion est effective, l’affinage a lieu.

Modélisation de la pénétration du champ de vitesse dans la zone pâteuse

Reprenant les phénomènes présents lors de la solidification sous convection forcée (voir le paragraphe 6.1), l’effet des paramètres de coulée sur la pénétration du liquide dans la zone pâteuse est étudié. Il a été vu que le paramètre qui a le plus d’influence sur la qualité de l’affinage de grains, était la distance inducteur-liquidus. Par conséquent, l’effet de cette distance sur la pénétration du champ de vitesse dans la zone pâteuse est caractérisé par des calculs de simulation numérique, cette fois-ci appliqué aux conditions de coulée Bridgman. Les conditions appliquées sont identiques à celles définies dans le paragraphe 5.4. Le maillage a simplement été affiné proche du liquidus, dans le but d’augmenter la précision des résultats dans cette région. Les résultats étant évidemment les mêmes que ceux présentés précédemment (la taille du maillage n’influençant pas ou peu les résultats), seuls les profils verticaux correspondant au module de la vitesse et à la fraction de solide sont présentés, pour les différentes positions de l’inducteur en fonction de la distance par rapport au liquidus (voir la figure 6.19).

Sur ces courbes, il est donc possible de caractériser l’effet de la position de l’inducteur et plus précisément de la distance inducteur-liquidus. Pour pouvoir comparer les différents résultats, la position du liquidus a été prise comme référence et choisie à $d_L = 0$. Des tendances similaires sont observées pour les deux alliages, la pénétration du champ de vitesse étant plus importante lorsque l’inducteur est rapproché de la position du liquidus. Les valeurs de pénétration sont de 0.75 et 1 mm pour l’alliage C97 et de 1.2 et 2.1 mm pour l’alliage BZ4 lorsque l’inducteur est en position (1) et (2), respectivement. Cependant, dans le but de comparer des phénomènes comparables, il faut prendre en compte ces valeurs de pénétration lorsque la distance inducteur-liquidus est la même. C’est à dire que les conditions pour lesquelles l’inducteur est en position (1) et (2) pour l’alliage C97, doivent être comparées aux conditions pour lesquelles la bobine est en position (2) et en position (2) avec ΔT_2 pour l’alliage BZ4. Dans ce dernier cas, les valeurs déterminées sont respectivement de 2.1 et 2.5 mm.

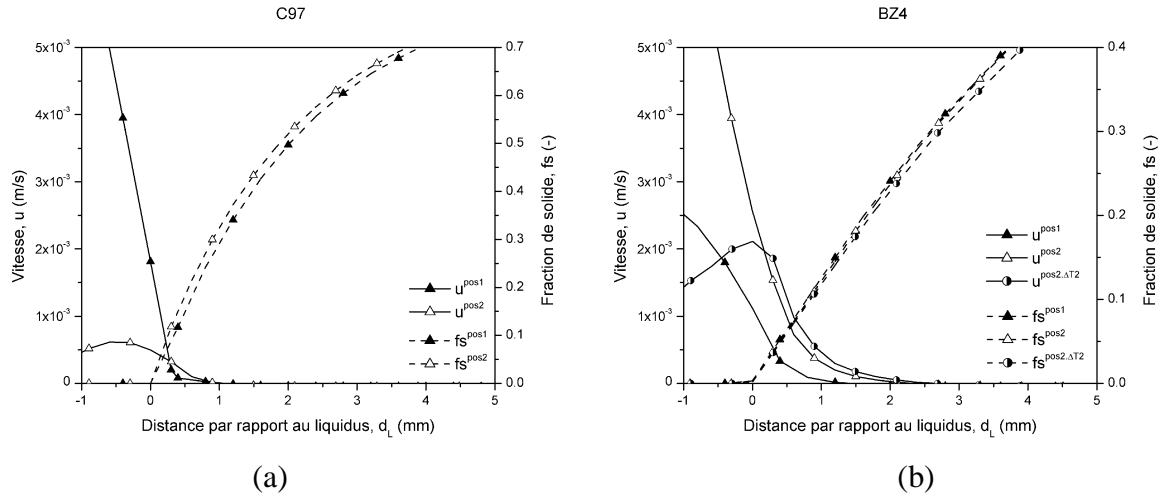


Figure 6.19 : Profil vertical du module de la vitesse et de la fraction de solide, en fonction de la distance par rapport au liquidus, pour les alliages C97 (a) et BZ4 (b), et sous différentes conditions : l’inducteur est en position (1) (triangle noir), en position (2) (triangle blanc) et en position (2) avec ΔT_2 (cercle noir et blanc).

Les profils de vitesse, qui sont localisés dans la partie liquide proche de l’interface, sont relativement différents pour un même matériaux. Ce phénomène, déjà observé lors de la présentation de ces résultats de simulation numérique (voir paragraphe 5.4.2), s’explique par la présence ou non d’un ou deux vortex de convection, ceci dépendant principalement de la position de l’inducteur. Il est à noter que les calculs numériques ont été menés en tenant compte, bien évidemment, du terme de pénalisation des vitesses du liquide par la perméabilité. Comme précédemment, les valeurs des espacements secondaires de dendrites correspondent à ceux après maturation. Ils sont respectivement de 70 et 43 μm pour les alliages C97 et BZ4.

On peut voir sur la figure 6.19, que le champ de vitesse est considérablement freiné à partir du moment où la fraction de solide est plus grande que 0. L’influence du mode de convection, en avant du liquidus, est important. En effet, dans le cas de l’alliage C97 par exemple, un vortex de convection est observé très proche du liquidus lorsque l’inducteur est en position (2). Malgré le fait que la valeur du module de la vitesse au liquidus soit inférieure à celle observée lorsque l’inducteur est en position (1), la vitesse diminue moins rapidement en pénétrant la zone pâteuse. On se retrouve alors dans le cas où cette valeur de la vitesse devient plus grande dans la région à 0.5 mm à l’intérieur de la zone pâteuse. La convection interdendritique est donc plus importante lorsque l’inducteur est plus proche de l’interface.

On peut donc déduire de ces différents résultats que, plus la distance inducteur-liquidus diminue, plus la pénétration du liquide dans la zone pâteuse est importante. Remarquons que la diminution ou la disparition du second vortex de convection n’est pas un facteur qui diminue cette pénétration, bien au contraire. Il semble donc que le phénomène le plus important soit la distance entre l’inducteur et la position du liquidus.

Si les valeurs de pénétration du champ de vitesse des deux alliages sont comparées, les constatations qui avaient été faites à partir de simulations dans une cavité représentative se confirment en solidification Bridgman. Il est plus facile, pour le liquide, d’atteindre des régions de la zone pâteuse plus profondes dans le cas de l’alliage BZ4. Soulignons également que les vitesses de convection interdendritiques sont plus importantes pour l’alliage BZ4, à position dans la zone pâteuse équivalente.

Refusion locale des bras de dendrite

Le phénomène de refusion d’un alliage se traduit par la diminution de sa fraction volumique de solide. Considérons un bras de dendrite de section circulaire en cours de refusion, la fraction de solide, en deux dimensions, s’exprime comme le rapport de la surface occupée par le solide sur la surface disponible (fig. 6.20(a)) :

$$f_s = \left(\frac{R}{R_0} \right)^2 \quad (6.5)$$

Lors de la refusion de ce bras de dendrite, le rayon et la fraction de solide diminuent (fig. 6.20(a)). En considérant la loi des leviers, le diagramme de phase binaire ($k < 1$) présenté à la figure 6.20(b) correspond aux situations pour lesquelles le rayon de la section du bras de dendrite est égal à R (1) et à R' (2), $R > R'$ (fig. 6.20(a)). La diminution de la fraction de solide peut donc être obtenue en augmentant la température pour une même concentration moyenne C_l (de T_1 à T_2) ou en augmentant la concentration moyenne pour une même valeur de la température T_l (de C_1 à C_2). La refusion locale d’un bras de dendrite est donc induite par un apport de liquide chaud ou plus riche en soluté.

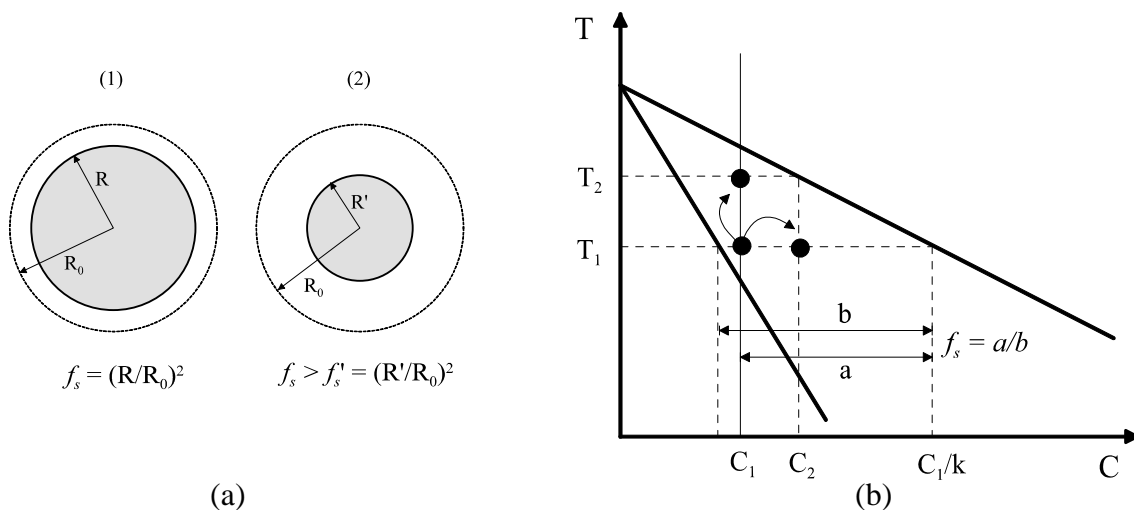


Figure 6.20 : Illustration schématique de la refusion d’un bras de dendrite de section circulaire (a) et correspondance sur un diagramme de phase binaire (b).

Ce phénomène de variation de la concentration a été étudié lors d’études portant sur la macroségrégation, prenant en compte la vitesse d’avance des isothermes, la vitesse du fluide in-

terdendritique, la variation de densité et de la fraction de solide volumique. L’équation, développée par Flemings et décrivant ce phénomène (diffusion nulle dans le solide) [120] s’écrit :

$$\frac{\partial f_l}{\partial C_l} = -\left(\frac{1-\beta}{1-k}\right)\left(1 + \frac{\mathbf{u}_l^d \cdot \nabla T}{\dot{T}}\right)\frac{f_l}{C_l} \quad (6.6)$$

où β est le coefficient de retrait ($\beta = \rho_l/\rho_s - 1$), \mathbf{u}_l^d la vitesse du liquide interdendritique, \dot{T} la vitesse de refroidissement, f_l la fraction de liquide et C_l la concentration du liquide. ρ_l et ρ_s sont les masses spécifiques des phases liquide et solide, respectivement. Or, la vitesse de refroidissement peut s’exprimer en fonction de la vitesse d’avance des isothermes, V_T , suivant la relation:

$$|\dot{T}| = \mathbf{V}_T \cdot \nabla T$$

l’équation (6.6) devient :

$$\frac{\partial f_l}{\partial C_l} = -\left(\frac{1-\beta}{1-k}\right)\left(1 - \frac{\mathbf{u}_l^d \cdot \nabla T}{\mathbf{V}_T \cdot \nabla T}\right)\frac{f_l}{C_l} \quad (6.7)$$

et par projection sur l’axe z (∇T étant parallèle à l’axe z , dans notre cas), on obtient :

$$\frac{\partial f_l}{\partial C_l} = -\left(\frac{1-\beta}{1-k}\right)\left(1 - \frac{u_{l,z}^d}{V_{T,z}}\right)\frac{f_l}{C_l} \quad (6.8)$$

Dans le cas où les masses spécifiques des phases solide et liquide sont considérées égales, β devient nul. Après intégration de la relation (6.8), une relation de type Scheil (cas pour lequel il n’y a pas de convection interdendritique, $u_{l,z}^d = 0$) est obtenue, en fonction des vitesses du liquide interdendritique et d’avance des isothermes :

$$f_l = \left(\frac{C_l}{C_0}\right)^{-\left(\frac{1}{1-k}\right)\left(1 - \frac{u_{l,z}^d}{V_{T,z}}\right)} \quad (6.9)$$

On définit alors un critère de refusion lorsque :

$$\frac{u_{l,z}^d}{V_{T,z}} > 1 \quad (6.10)$$

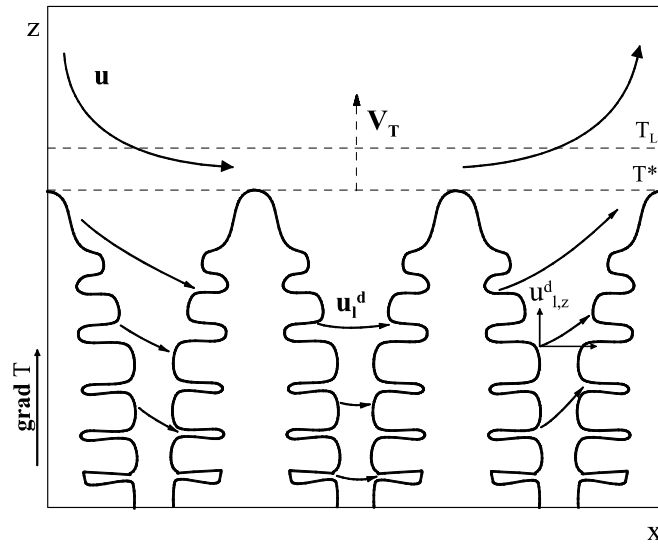


Figure 6.21 : Représentation schématisée des vitesses de convection dans le liquide, u , et dans les régions interdendritiques, u_l^d (et sa projection sur le gradient thermique, parallèle à l'axe z , $u_{l,z}^d$). La vitesse d'avance des isothermes est notée V_T .

A l'échelle d'un bras secondaire de dendrite, si la vitesse du liquide interdendritique sortante est plus importante que la vitesse d'avance des isothermes, dans le sens du gradient thermique, il y aura donc un apport de liquide plus froid et plus allié (fig. 6.21). On peut alors considérer que la température plus basse du liquide avoisinant n'aura pas d'influence comparée à l'effet de la concentration en soluté, la diffusion de la chaleur étant très rapide par rapport à celle du soluté^(a), homogénéisant la température rapidement. Par contre, l'augmentation de la concentration moyenne du liquide avoisinant provoque la refusion du bras de dendrite jusqu'à refusion complète de son "cou", permettant le détachement du fragment (6.20(b)). Pour illustrer ce phénomène dans le cas de la convection naturelle, on peut voir apparaître des "freckles" (canaux ségrégés) dans lesquels des fragments de dendrites refondus sont emportés par la convection allant dans le sens du gradient thermique [78].

Considérons qu'à l'état stationnaire, la vitesse d'avance des isothermes soit égale à la vitesse d'avance du front de solidification (elle-même considérée identique à la vitesse de tirage, V_c). Dans le cas d'une convection forcée, la vitesse de convection interdendritique dans le sens du gradient thermique doit donc être plus grande que la vitesse de tirage, pour qu'il y ait refusion. Si nous nous basons sur la notion de perméabilité et sur les calculs numériques de la vitesse de convection dans la zone pâteuse, la vitesse du liquide interdendritique projetée sur ∇T (dans notre cas, parallèle à l'axe z) peut être évaluée. Reprenant les calculs numériques réalisés pré-

(a). On définit un nombre qui exprime le rapport entre la diffusivité thermique et le coefficient de diffusion, le nombre de Lewis. Dans notre cas, ce nombre est égal à $5.57 \cdot 10^4$ et $1.84 \cdot 10^4$ pour l'alliage C97 et BZ4, respectivement (voir les valeurs de la diffusivité thermique et du coefficient de diffusion dans le liquide en annexes).

cédemment, l’évolution du critère de refusion, défini par la relation (6.10), et de la fraction de solide avec la distance par rapport au liquidus, est représentée sur la figure 6.22. Le critère de refusion, C_R , est donc :

$$C_R = \frac{u_z}{V_C} > 1 \quad (6.11)$$

la composante verticale de la vitesse de convection calculée étant u_z . Dans le cas de l’alliage C97, la vitesse interdendritique n’est supérieure à la vitesse de tirage que dans des régions très proches du liquidus. Les conditions de refusion ($C_R > 1$) sont satisfaites jusqu’à une distance de 0.3 ($f_s \sim 0.09$) et 0.6 mm ($f_s \sim 0.22$) dans la zone pâteuse, correspondant aux positions (1) et (2) de l’inducteur, respectivement. Rappelons qu’expérimentalement l’échantillon coulé avec une position d’inducteur (1) ne présente pas d’affinage de grains, contrairement au cas où l’inducteur est en position (2). On peut donc considérer qu’à 0.3 mm les bras de dendrites ne sont pas encore développés, et ne peuvent donc être refondus (les vitesses du liquide interdendritique pour des profondeurs plus importantes étant trop faibles pour qu’il y ait refusion). Remarquons que cette valeur correspond approximativement à $4.3 \lambda_2$. Dans ce cas, la vitesse interdendritique devient plus faible que la vitesse d’avance des isothermes à partir d’environ 4 bras secondaires. On peut donc penser que ces premiers bras de dendrites ne sont pas suffisamment développés pour que leur "cou" soit refondu et qu’il permettent la création d’un fragment. Ils sont alors certainement refondus complètement. Par contre à la distance équivalente à $8.5 \lambda_2$, les bras de dendrites sont refondus puisque la structure observée est équiaxe.

Dans le cas de l’alliage BZ4, ces conditions de refusion sont encore satisfaites dans des régions de la zone pâteuse beaucoup plus profondes. En effet, on peut déterminer des profondeurs de 0.8 ($f_s \sim 0.1$), 1.6 ($f_s \sim 0.2$) et 2 mm ($f_s \sim 0.23$), pour les conditions de coulée: position de l’inducteur (1), (2) et (2) avec ΔT_2 , respectivement. Remarquons que, dans le cas de cet alliage, les profondeurs de pénétration à partir desquelles le critère de refusion est satisfait, correspondent à environ 19, 38 et $47.5 \lambda_2$, respectivement.

Il semble donc que la fragmentation ne soit effective que lorsque les bras secondaires de dendrites sont suffisamment développés (présence d’un "cou" à la base du bras de dendrite). On peut estimer approximativement la distance à laquelle un bras secondaire est susceptible d’être refondu (fig. 6.23), par l’observation d’une dendrite d’alliage organique SCN-acétone. Dans ce cas, cette distance est égale à 400 μm , ce qui correspond à environ $8 \lambda_2$. Les résultats obtenus précédemment pour l’alliage C97 confirment cette observation : si le critère de refusion est satisfait pour une distance dans la zone pâteuse supérieure à $8 \lambda_2$ la fragmentation a lieu, autrement, les bras secondaires de dendrites sont complètement refondus et ne donnent pas naissance à des fragments.

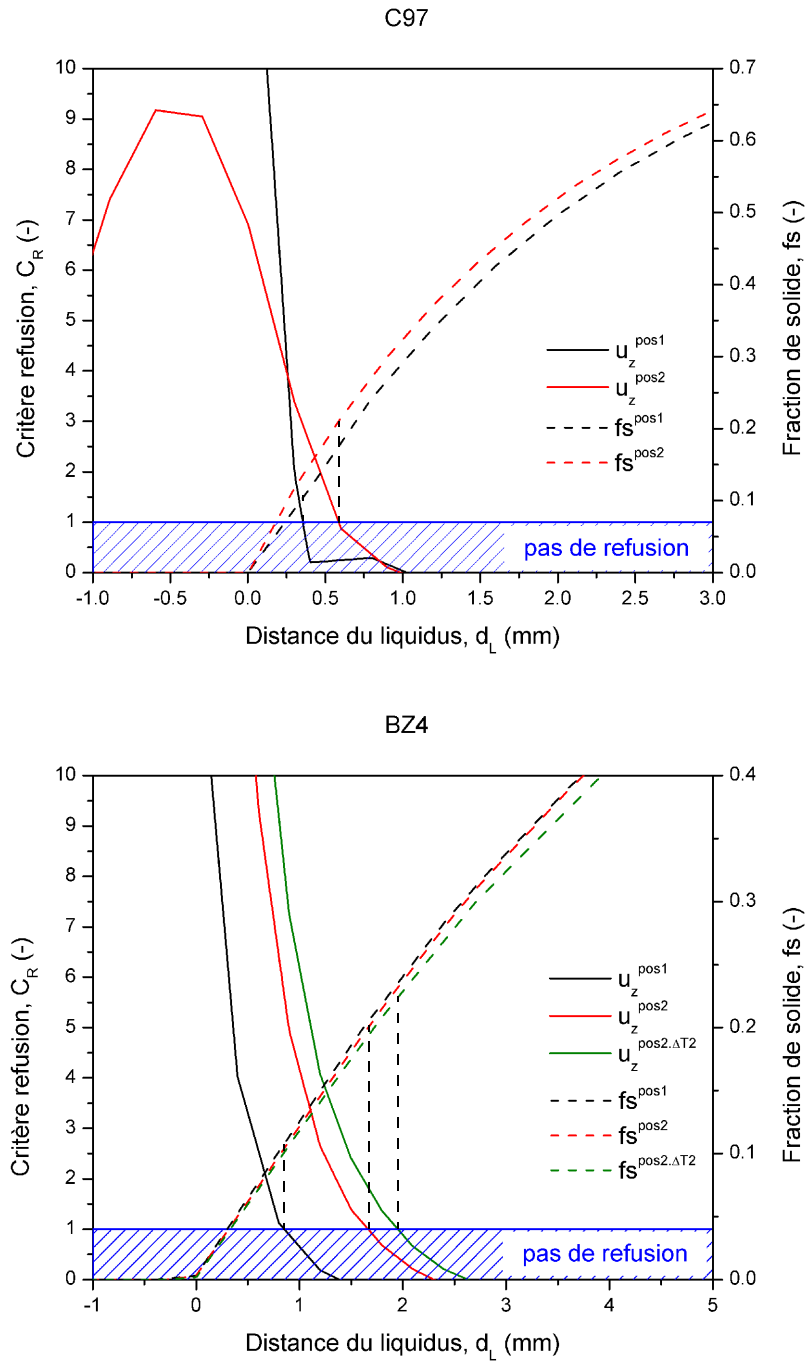


Figure 6.22 : Critère de refusion, C_R (relation (6.11)), obtenu à l’aide du profil vertical de la vitesse calculée selon l’axe z , u_z , en fonction de la position dans la zone pâteuse, d_L , pour les deux alliages et sous différentes conditions : l’inducteur est en position (1) (courbes noires), en position (2) (courbes rouges) et en position (2) avec ΔT_2 (courbe verte).

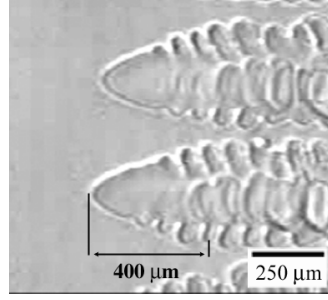


Figure 6.23 : Agrandissement de la figure 1.3 illustrant la croissance dendritique d'un alliage organique SCN-acétone. Cette figure est utilisée pour déterminer la distance à partir de laquelle un bras secondaire de dendrite peut donner naissance à un fragment, c'est-à-dire à partir de laquelle il présente un "cou" à sa base.

La position de l'inducteur par rapport à la position du liquidus est un paramètre prépondérant sur la refusion des bras de dendrites, puisque cette refusion dépend directement de la vitesse du liquide interdendritique. On peut notamment estimer la distance minimale nécessaire pour induire la refusion, en déterminant l'ordre de grandeur de la vitesse du liquide interdendritique via l'écoulement de type Darcy en négligeant l'effet de pesanteur :

$$u_{l,z}^d = -\frac{K}{\rho\nu} \frac{dp}{dz} \quad (6.12)$$

où p est la pression. On peut alors estimer l'ordre de grandeur du gradient de pression induit par l'action du champ magnétique [39] : $B_0^2/(\mu_0 \cdot L)$. Dans notre cas, on définit L comme la distance inducteur-liquidus, d_{ind} , qui correspond à $-z$. L'équation (6.12) devient donc :

$$u_{l,z}^d \sim \frac{K}{\rho\nu} \frac{B_0^2}{\mu_0 d_{ind}} \quad (6.13)$$

Pour que la refusion ait lieu, la condition (6.10) doit être satisfaite et la relation suivante est donc obtenue :

$$C_R \sim \frac{1}{V_c} \frac{K}{\rho\nu} \frac{B_0^2}{\mu_0 d_{ind}} > 1 \quad (6.14)$$

La refusion dépend donc de la convection induite par l'action du champ magnétique B , de la vitesse de tirage V_c , de la perméabilité de l'alliage considéré K (et donc de l'évolution de sa fraction de solide) et de la distance inducteur - liquidus, d_{ind} :

- Une puissance d'induction accrue (c'est-à-dire un champ électromagnétique plus important) augmente la vitesse de convection du liquide en volume et la vitesse de convection du liquide interdendritique.
- Une perméabilité importante améliore la refusion. En effet, une bonne perméabilité de la zone pâteuse favorise la pénétration du liquide dans la zone pâteuse. La convection du liquide interdendritique peut donc être suffisamment importante pour fragmenter les

dendrites, ce qui provoque l’affinage de la structure.

- L’augmentation de la vitesse de tirage a deux effets distincts. Premièrement la refusion des bras de dendrites n’est pas favorisée car la vitesse d’avance des isothermes est augmentée. Cela ne permet donc pas au liquide riche en soluté d’atteindre des régions plus pauvres afin de refondre les bras de dendrites. Deuxièmement, l’étendue de la surfusion en avant du front de solidification est plus importante. La survie des fragments est donc améliorée. Pour obtenir la fragmentation des dendrites, la vitesse de tirage doit donc être suffisamment importante pour que les fragments ne soient pas instantanément refondus, mais elle doit également être plus faible que la vitesse de convection du liquide interdendritique.
- Diminuer la distance inducteur-liquidus favorise la refusion, par l’augmentation de la pénétration du liquide dans la zone pâteuse. On a pu voir que localiser les mouvements de convection sur le front de solidification induit une meilleur pénétration du liquide dans la zone pâteuse, ce qui a pour effet d’augmenter la vitesse de convection du liquide interdendritique.

Il a été montré que l’affinage de grains dépend fortement du phénomène de fragmentation, mais pas seulement. En effet, il est important de considérer le transport et surtout la survie de ces fragments pour expliquer la présence de structure affinée. Cependant ce phénomène étant très complexe, il n’a pas été détaillé dans ce travail. Nous donnerons donc seulement quelques tendances.

6.3.4. Transport et survie des fragments

Le transport des fragments est assuré par la convection, induite par l’action du champ magnétique. Lors de ce projet, nous avons estimé que les mouvements de convection sont suffisamment vigoureux pour assurer le transport des fragments dans et en dehors de la zone pâteuse. Si ces fragments sont emportés dans des régions très chaudes, au delà de la zone en surfusion, leur survie est quasiment nulle. Cependant, on peut considérer que chaque fragment a sa propre vitesse de refusion. Cette vitesse comparée à la vitesse de convection du liquide et à la vitesse d’avance du front de solidification, peut nous permettre d’estimer les conditions de transport et de survie des fragments.

La survie des fragments de dendrite étant liée à leur refusion, ce phénomène est directement fonction de la surfusion en avant du front de solidification, de la vitesse à laquelle les fragments sont entraînés et de la vitesse à laquelle les fragments sont refondus.

Surfusion de croissance colonnaire

Comme il a été vu dans les chapitres 2 et 3, cette surfusion varie avec la nature de l’alliage et les conditions de coulée. Dans le cas de la croissance colonnaire, on définit une surfusion de croissance colonnaire, ΔT_{col} , pour des systèmes multicomposés, qui peut être déterminée par le modèle KGT adapté aux systèmes complexes [21] (voir le chapitre 3, équation (3.7)). La figure 6.24 présente l’évolution de la surfusion de croissance colonnaire en fonction de la vitesse

d’avance du front de solidification, estimée à l’aide du modèle KGT (voir les résultats obtenus au paragraphe 5.2).

A partir de ces courbes, on peut donc déterminer les surfusions qui apparaissent pendant les coulées de type Bridgman et lors des essais de coulée continue. Etant donné que la vitesse d’avance du front de solidification est estimée égale à la vitesse de tirage, à l’état stationnaire et avec des isothermes planes, les valeurs des surfusions obtenues pour les différentes vitesses de tirage utilisées sont répertoriées dans le tableau 6.3. Comme on peut le voir, les surfusions pour l’alliage BZ4 sont entre 2 et 4 fois supérieures à celles de l’alliage C97, pour des conditions identiques. On remarquera, en effet, que pour une vitesse de 10 $\mu\text{m/s}$, l’alliage BZ4 croît de manière dendritique alors que l’alliage C97, moins allié, est proche de la limite de surfusion constitutionnelle. On peut également déduire que, compte tenu du fait que le rapport entre les surfusions calculées pour l’alliage C97 et l’alliage BZ4 n’est pas fixe, l’expression générale de la vitesse de croissance dendritique, $V = A' \Delta T_{col}^n$, n’est plus applicable, la relation entre la vitesse et la surfusion étant plus complexe.

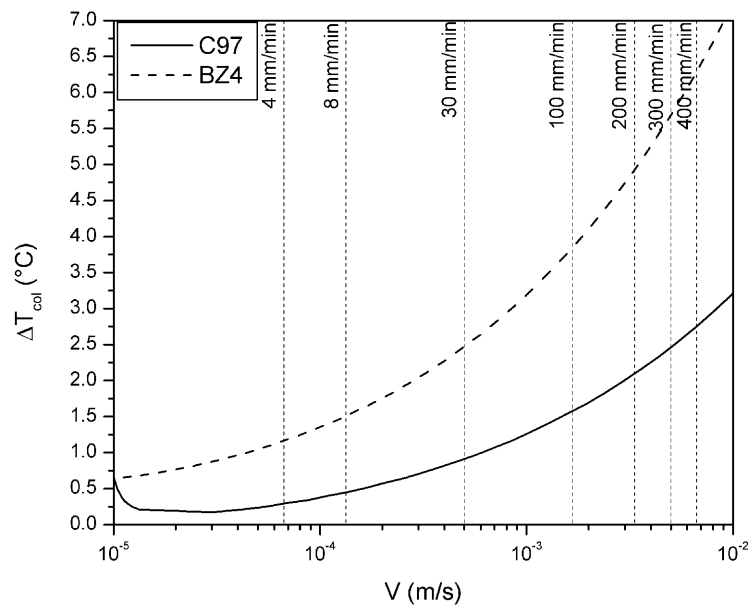


Figure 6.24 : Evolution de la surfusion de croissance colonnaire en fonction de la vitesse d’avance du front de solidification, pour les deux alliages.

Tableau 6.3: Surfusions de croissance colonnaire déterminées par le modèle KGT, pour les deux alliages et pour différentes vitesses de tirage (voir fig. 6.24).

ΔT_{col} (°C)	V_c (mm/min)						
	4	8	30	100	200	300	400
C97	0.3	0.45	0.9	1.6	2.1	2.4	2.7
BZ4	1.2	1.5	2.5	3.8	4.9	5.7	6.2

Vitesse de refusion

Han et Hellawell ont estimé que la refusion est due à des phénomènes chimiques ou thermiques lorsque la température du liquide autour des fragments est supérieure à celle du fragment lui-même [81]. Il a d’ailleurs été observé, dans le cas du SCN, que les vitesses de dissolution (refusion solutale) sont très faibles ($\sim 5 \mu\text{m/s}$), comparées aux vitesses de refusion thermique ($\sim 10\text{-}70 \mu\text{m/s}$).

Dans la suite, nous considérerons que les fragments n’ont pas le temps d’être refondus s’ils restent dans la zone pâteuse. On négligera donc la vitesse de dissolution, ne s’intéressant qu’au cas de figure où les fragments sont emportés dans des régions chaudes. La vitesse de refusion thermique est donnée par la relation suivante [81] :

$$V_R L_f = \frac{\kappa_l \cdot \Delta T_{fr}}{\delta_{fr}} \quad (6.15)$$

où V_R est la vitesse de refusion, L_f la chaleur latente de fusion, κ_l la conductivité thermique du liquide, ΔT_{fr} la surchauffe du liquide avoisinant et δ_{fr} l’épaisseur de la couche limite thermique. Pour un fragment de $100 \mu\text{m}$, on choisit arbitrairement une couche limite de $200 \mu\text{m}$. La chaleur latente de fusion est choisie égale pour les deux alliages : $1.3 \cdot 10^9 \text{ Jm}^{-3}$. Les conductivités thermiques sont respectivement de 245 et $80 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour les alliages C97 et BZ4 ([12, 116]). L’évolution des vitesses de refusion des fragments est représentée sur la figure 6.25, pour l’alliage C97 et BZ4.

De par la plus grande conductivité thermique de l’alliage C97, les fragments sont susceptibles de fondre trois fois plus rapidement que pour l’alliage BZ4.

Bien évidemment ces calculs sont très qualitatifs, à une surchauffe de 1°C , la vitesse de refusion des fragments d’alliage C97 serait d’environ 1 mm/s et de 0.3 mm/s pour l’alliage BZ4. La durée de vie d’un fragment serait donc inférieure à la seconde. Il faut bien sûr prendre en compte que ce calcul est valable pour un fragment sphérique de petite taille, plongé dans un bain liquide, à la température homogène. Les phénomènes de refusion des fragments sont beaucoup plus complexes. Cependant, la tendance devrait rester la même, à savoir qu’un fragment d’alliage C97 a une durée de vie plus courte qu’un fragment d’alliage BZ4.

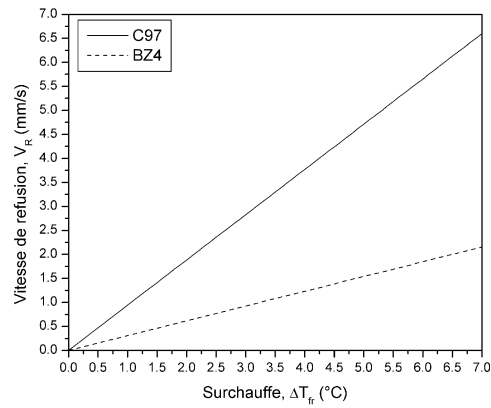


Figure 6.25 : Vitesses de refonte des fragments en fonction de la surchauffe du liquide avoisinant.

Dans le cas de l’alliage BZ4, la surfusion de croissance colonnaire étant plus importante et la vitesse de refusion des fragments plus faible que dans le cas de l’alliage C97, la survie des fragments de dendrite est donc favorisée.

CONCLUSION



Le but de cette étude était de caractériser et de mieux comprendre les différences d'affinage de grains induit par brassage électromagnétique (EMS) dans les alliages cuivreux. La solidification de deux alliages industriels à base cuivre, alliages différents en terme de composition (donc de structure de zone pâteuse), a été étudiée expérimentalement et par simulation numérique. Les alliages C97 (Cu-1%Ni-1%Pb-0.2%P) et BZ4 (Cu-4%Zn-4%Sn-4%Pb) ont été solidifiés par coulée continue sous champ magnétique alternatif (procédé industriel). L'affinage de la structure a été observé dans certaines conditions. La difficulté a donc été de savoir quelles étaient ces conditions, pourquoi et dans quelle mesure elles influençaient l'affinage. Dans le but de déterminer l'effet des principaux paramètres expérimentaux qui interviennent lors de la solidification de ces alliages, un four de solidification dirigée de type Bridgman avec un dispositif de brassage électromagnétique a été conçu. Ce dispositif, indépendant du système de chauffage, assure ainsi un contrôle de chacun des paramètres de coulée. En parallèle à différents outils d'analyse utilisés (analyses thermiques, microscopies optique et électronique, EBSD et EDX), le logiciel *calcosoft*® a été employé pour caractériser la convection induite dans le liquide par l'action du champ magnétique et son effet sur l'histoire thermique des alliages, au cours de la solidification.

Cette étude peut se résumer en deux étapes : une étude de la solidification des deux alliages sans et avec brassage électromagnétique.

La première partie a consisté à caractériser les structures obtenues, l'évolution de la fraction de solide et la nature des phases qui précipitent, lors de la solidification des alliages C97 et BZ4 sans EMS :

- Etant donnée la différence de configuration du gradient thermique à l'interface, les grains sont orientés parallèlement à l'axe longitudinal des échantillons en solidification Bridgman, et de la surface vers le centre, dans le cas de la coulée continue à haute vitesse. Les espacements secondaires de dendrites ont été mesurés à plusieurs vitesses de coulée, permettant de valider les prédictions de l'évolution de λ_2 en fonction de la vitesse de refroidissement.
- L'évolution de la fraction de solide avec la température a été déterminée à l'aide d'une expérience d'analyse thermique, SPTA, conçue au laboratoire afin de diminuer la surfu-

sion de germination rencontrée lors d'analyses DTA. Ces évolutions montrent deux comportements différents pour les deux alliages : la pente relativement raide de la courbe $f_s(T)$, rencontrée dans le cas de l'alliage C97, implique une structure dendritique relativement compacte, contrairement à l'alliage BZ4.

- Les différentes phases qui précipitent au cours de la solidification des alliages, ont été caractérisées par EDX.

La seconde partie a été consacrée à l'étude de l'effet des paramètres de coulée sur l'efficacité de l'affinage de grains, au cours de la solidification avec brassage électromagnétique. Les résultats expérimentaux et numériques ont montré que :

1. Le brassage du liquide induit par la présence d'un champ magnétique alternatif, homogénéise la température (et probablement la concentration au voisinage du liquidus), diminuant sensiblement le gradient thermique. Le mode de convection est turbulent dans les conditions Bridgman et de coulée continue.
2. L'affinage de grains en solidification Bridgman est observé seulement pour une puissance d'induction supérieure à 30% de la puissance totale du générateur du four Bridgman (5.8 kW). Il est important de noter que de manière générale, l'alliage C97 est plus difficile à affiner que l'alliage BZ4. La taille moyenne des grains équiaxes est de 1.5 mm et 500 μm , pour les alliages C97 et BZ4, coulés par procédé Bridgman ($V_c = 4 \text{ mm/min}$), respectivement, et de 300 μm pour les deux alliages coulés par procédé industriel ($V_c = 400 \text{ mm/min}$).
3. L'utilisation du modèle de transition colonnaire-équiaxe de Hunt, appliqué à notre cas, a permis de déterminer de façon qualitative les structures obtenues. Cependant, les paramètres de ce modèle (gradient thermique, vitesse de coulée, surfusion de croissance colonnaire, etc) ne font pas intervenir la convection, si ce n'est par la mesure du gradient thermique sous convection. Il a été montré que ce modèle reste très dépendant du nombre de sites de germination N_0 estimé. Dans notre cas, N_0 a été déterminé en mesurant la densité de grains sur la surface des échantillons, en considérant que chaque germe donne naissance à un grain. Ces résultats restent donc des tendances et ne permettent pas de caractériser avec précision la transition entre une structure colonnaire et équiaxe. Néanmoins la propension à un affinage plus facile a été observée pour l'alliage BZ4.
4. L'efficacité du brassage électromagnétique pour affiner la structure est améliorée de manière importante lorsque la distance inducteur-liquidus est minimale et que la pénétration du liquide dans la zone pâteuse est importante. Il a donc été considéré que le mécanisme prépondérant, responsable de l'affinage, est la refusion des bras de dendrites, puisqu'elle dépend de la vitesse du liquide interdendritique, elle-même fonction de la

perméabilité de la zone pâteuse. Cette refusion, entraînant la formation de fragments, favorise la croissance de grains équiaxes, si les fragments survivent. Un critère simple de refusion de bras de dendrites, basé sur la comparaison entre la vitesse du liquide interdendritique, $u^d_{l,z}$, et la vitesse d'avance des isothermes, V_T (modèle de Flemings), a donc été adapté. Il a été montré que la refusion des bras de dendrites est provoquée par l'augmentation de la température ou de la concentration du liquide environnant. L'augmentation de la température du liquide est induite par la pénétration de liquide chaud, provenant des régions complètement liquides, dans la zone pâteuse (vitesse entrante). L'augmentation de la concentration moyenne est provoquée par la convection du liquide interdendritique, cette fois-ci dans le sens du gradient thermique (vitesse sortante de la zone pâteuse), à la condition que la composante suivant z de la vitesse du liquide interdendritique soit supérieure à la vitesse d'avance des isothermes. La refusion est donc effective lorsque $u^d_{l,z} > V_T$. Cette vitesse interdendritique calculée par simulation numérique est donc implémentée dans le critère de refusion, permettant de définir les conditions expérimentales qui favorisent la refusion : une puissance d'induction importante car elle est directement liée à l'intensité de la convection et une distance inducteur-liquidus la plus faible possible puisqu'elle améliore la pénétration du liquide dans la zone pâteuse. Il est important de noter que ce critère de refusion est applicable à n'importe quel système, seule l'évolution de la fraction de solide avec la température doit être connue. Il est alors possible de calculer les mouvements de convection induits dans le liquide et de déterminer la vitesse du liquide interdendritique, et de ce fait utiliser ce critère.

- De manière générale, il a été observé qu'une augmentation sensible de la vitesse de tirage dans les mêmes conditions expérimentales (de 4 mm/min à 30 mm/min) améliore l'affinage pour les deux alliages. Cependant, la vitesse de tirage, V_c , a plusieurs effets. Si on considère les isothermes planes, accroître V_c augmente la surfusion de croissance colonnaire, améliorant la survie des fragments, mais restreint également la fragmentation par l'augmentation de la vitesse des isothermes. De plus, cette augmentation de V_c induit une diminution de la taille de la microstructure, diminuant également la perméabilité de la zone pâteuse et, par conséquent, la pénétration du liquide dans les régions interdendritique. Enfin, il ne faut pas oublier que la forme des isothermes est dépendante de la vitesse de coulée, s'incurvant pour des vitesses importantes et donc modifiant le sens du gradient thermique. Notons tout de même qu'à conditions expérimentales identiques, l'étendue de la zone en surfusion, en avant du front de solidification, est presque trois fois plus importante dans le cas de l'alliage BZ4. Il en est de même pour la vitesse de refusion d'un fragment, qui dépend de la surfusion dans laquelle il se trouve. En effet, un fragment d'alliage BZ4 refond moins rapidement que celui d'un alliage C97, à cause de la très bonne conductibilité thermique de ce dernier.

Les phénomènes responsables de l'affinage de grains sont nombreux et complexes. Il est donc difficile de les étudier tous. Lors de ce travail de recherche nous avons considéré que le

phénomène prépondérant était la fragmentation des bras de dendrites par refusion locale. Il apparaît donc important d'étudier de manière plus approfondie le critère de refusion que nous avons déterminé. Le critère étant basé sur l'évolution de la vitesse du liquide interdendritique (donc de la perméabilité), il s'avère nécessaire de caractériser cette vitesse plus précisément lors d'études futures, affinant l'effet du champ magnétique (intensité, fréquence, mode de convection). Des calculs numériques complets des mouvements de convection, prenant en compte les phénomènes de turbulences dans la zone pâteuse, seraient une bonne méthode pour déterminer l'influence de ces paramètres.

L'affinage des grains ne dépendant pas uniquement de la fragmentation, la survie et le parcours des fragments doivent être considérés. S'inspirant des travaux de Beckermann [77, 121] et Appolaire [122], le parcours des fragments et leur croissance peuvent être caractérisés en tenant compte de l'entraînement de ces particules (induit par les mouvements de convection) et de leur croissance sous convection forcée. Il sera alors important de prendre en considération l'augmentation de la viscosité du liquide interdendritique due à la présence même de ces fragments, ce qui diminuera certainement la turbulence de l'écoulement mais qui favorisera l'entraînement des fragments.

Enfin, l'application industrielle nécessite de déterminer précisément les divers effets de la vitesse de tirage sur cette convection, les vitesses de coulées employées étant de l'ordre de 400mm/min. La courbure des isothermes ayant un effet sur la perméabilité de la zone pâteuse, sur la refusion des bras de dendrites et sur l'étendue de la surfusion de croissance colonnaire.

LISTE DES SYMBOLES



Lettres romaines

A	constante de croissance	$\text{m s}^{-1} \% \text{pds K}^{-2}$
A	nombre d'Alfvén	-
A	surface	m^2
A	surface spécifique utilisée en SPTA	m^{-1}
A'	constante de croissance	$\text{m s}^{-1} \text{K}^{-2}$
B	champ magnétique	$\text{T (V s m}^{-2})$
C	concentration	$\% \text{pds}$
C_0	concentration initiale	$\% \text{pds}$
C_l	concentration du liquide	$\% \text{pds}$
C_l^*	concentration du liquide à l'interface	$\% \text{pds}$
C_p	chaleur spécifique massique	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
C_R	critère de refusion des bras de dendrites	-
d	distance	m
d_L	distance par rapport à la position du liquidus	m
d_{ind}	distance inducteur-liquidus	m
D	distance	m
D_l	coefficient de diffusion dans le liquide	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
D_s	coefficient de diffusion dans le solide	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
ΔG_n	énergie d'activation	J m^{-3}
ΔH_f	enthalpie de fusion volumique	J m^{-3}
ΔS_f	entropie de fusion volumique	$\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$
ΔT^*	surfusion de la pointe de la dendrite	K
ΔT^*	différence de température entre la pointe de la dendrite et le solidus	K
ΔT_0	intervalle de solidification	K
ΔT_c	surfusion chimique	K
ΔT_{col}	surfusion de croissance colonnaire	K

ΔT_n	surfusion de germination	K
ΔT_r	surfusion de courbure	K
ΔT_t	surfusion thermique	K
E	champ électrique	V m ⁻¹
f	fréquence	Hz
f_l	fraction de liquide	-
f_s	fraction de solide	-
F	force de Lorentz	N
g	vecteur de la gravité	m s ⁻²
G	gradient thermique	K m ⁻¹
G_c	gradient chimique	%pds m ⁻¹
h	coefficient de transfert de chaleur	W m ⁻² K ⁻¹
H	enthalpie volumique	J m ⁻³
Ha	nombre d'Hartmann	-
H^m	enthalpie massique	J kg ⁻¹
I	intensité du courant	A
I	taux de germination	m ⁻³ s ⁻¹
I_0	constante de germination	m ⁻³ s ⁻¹
j	densité de courant électrique	A m ⁻²
j_{ind}	densité de courant électrique induite	A m ⁻²
j_m	densité de courant moyenne	A m ⁻²
j_T	flux de chaleur	W m ⁻²
k	coefficient de partage	-
K	perméabilité	m ²
K^*	courbure de l'interface	m
k_B	constante de Boltzmann	J K ⁻¹
L	longueur caractéristique	m
L_f	chaleur latente de fusion volumique	J m ⁻³
L_z	étendue de la zone liquide	m
m	pente du liquidus	K %pds ⁻¹
M	facteur de calibration	-
N	nombre de sites de germination activés	m ⁻³
N	paramètre d'interaction	-
N_0	nombre de sites de germination par unité de volume	m ⁻³
p	pression	Pa
P	puissance	W
Pe	nombre de Péclet	-
q	densité de charge électrique	C (A s)
q	flux d'énergie	W m ⁻²

r	rayon d'un grain équiaxe	m
R	rayon de l'échantillon	m
R	rayon de courbure de la pointe de la dendrite	m
Re	nombre de Reynolds	-
R_m	nombre de Reynolds magnétique	-
R_{ω}	paramètre d'écran	-
S	surface	m ²
S_0	surface spécifique	m ⁻¹
S_V	surface spécifique du solide en contact avec le liquide	m ⁻¹
t	temps	s
t_f	temps de solidification	s
T	température	K
T^*	température de la pointe de la dendrite	K
T_E	température de l'échantillon	K
T_F	température du four	K
T_{ext}	température du creuset externe	K
T_L	température du liquidus	K
T_m	température de fusion d'un corps pur	K
T_R	température du creuset de référence	K
\dot{T}	vitesse de chauffe / refroidissement	K s ⁻¹
u	vitesse du fluide	m s ⁻¹
u_A	vitesse d'Alfvén	m s ⁻¹
u_l^d	vitesse du liquide interdendritique	m s ⁻¹
U	tension	V
V	vitesse d'avance du front de solidification	m s ⁻¹
V_C	vitesse de tirage	m s ⁻¹
V_e	vitesse de croissance d'un grain équiaxe	m s ⁻¹
V_R	vitesse de refusion des fragments de dendrite	m s ⁻¹
V_T	vitesse d'avance des isothermes	m s ⁻¹

Lettres grecques

α	nombre de Fourier pour la rétro-diffusion	-
α	diffusivité thermique	m ² s ⁻¹
α'	coefficient de rétro-diffusion	-
β	coefficient de retrait	-
β_C	coefficient d'expansion solutal volumique	%pds ⁻¹
β_T	coefficient d'expansion thermique volumique	K ⁻¹

δ	distance de pénétration du champ magnétique (peau magnétique)	m
δ_c	couche limite chimique	m
ε	émissivité	-
ε_0	permittivité diélectrique	F m ⁻¹ (A s V ⁻¹ m ⁻¹)
ϕ_E	fraction volumique étendue de cristaux équiaxes	-
Γ	coefficient de Gibbs-Thomson	m K
η	diffusivité magnétique	m ² s ⁻¹
φ	déphasage	-
κ	conductivité thermique	W m ⁻¹ K ⁻¹
λ_I	espacement primaire de bras de dendrites	m
λ_2	espacement des bras secondaires de dendrites	m
λ_i	longueur d'onde de la stabilité marginale	m
μ	viscosité dynamique	kg m ⁻¹ s ⁻¹
μ_0	perméabilité magnétique	H m ⁻¹ (V s A ⁻¹ m ⁻¹)
ν	viscosité cinématique	m ² s ⁻¹
θ	angle	°
ρ	masse spécifique	kg m ⁻³
σ	énergie interfaciale solide-liquide	J m ⁻²
σ_B	constante de Stefan-Boltzmann	W m ⁻² K ⁻⁴
σ_e	conductivité électrique	Ω^{-1} m ⁻¹ (A V ⁻¹ m ⁻¹)
ω	pulsation	Hz
Ω	sursaturation solutale	-

Systèmes de coordonnées

e_r, e_θ, e_z	coordonnées cylindriques	-
r, θ, z		
x, y, z	coordonnées cartésiennes	-
X0, Y0, Z0	coordonnées cartésiennes utilisées en EBSD	-

ANNEXE A : DIAGRAMMES DE PHASES



Les diagrammes de phase binaires Cu-(i) ont été utilisés pour l'estimation des différentes valeurs des températures de fusion des corps pur, T_m , des pentes de liquidus, m_i , et des coefficients de partage, k_i , à la concentration nominale $C_{0,i}$, pour chaque élément d'alliage i . Les figures suivantes donnent les diagrammes de phases Cu-Ni, Cu-P, Cu-Pb, Cu-Zn et Cu-Sn [123].

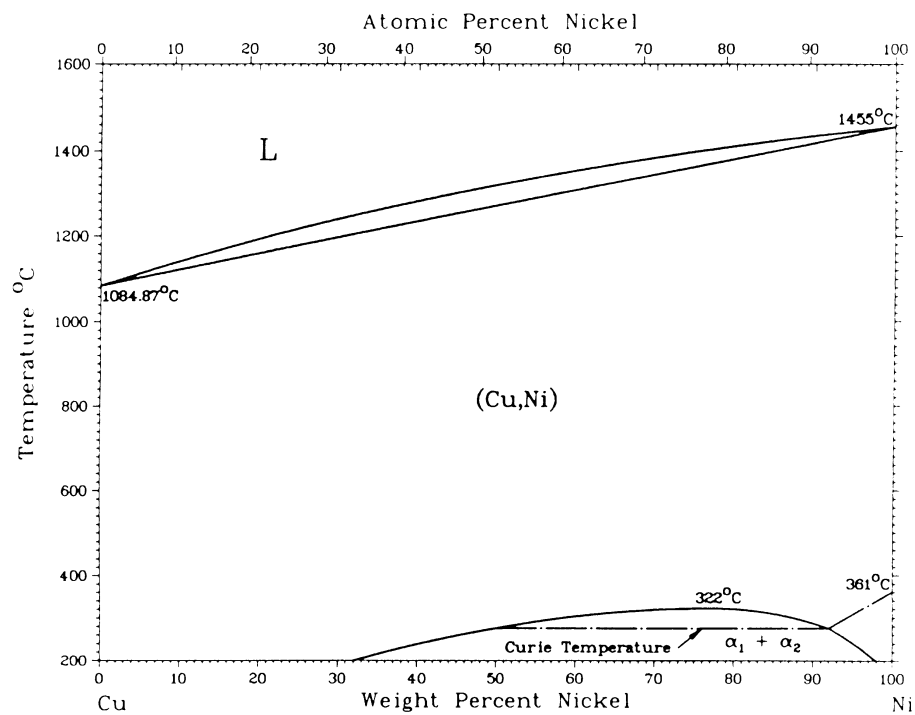


Figure A.1 : Diagramme de phase binaire entre le cuivre et le nickel.

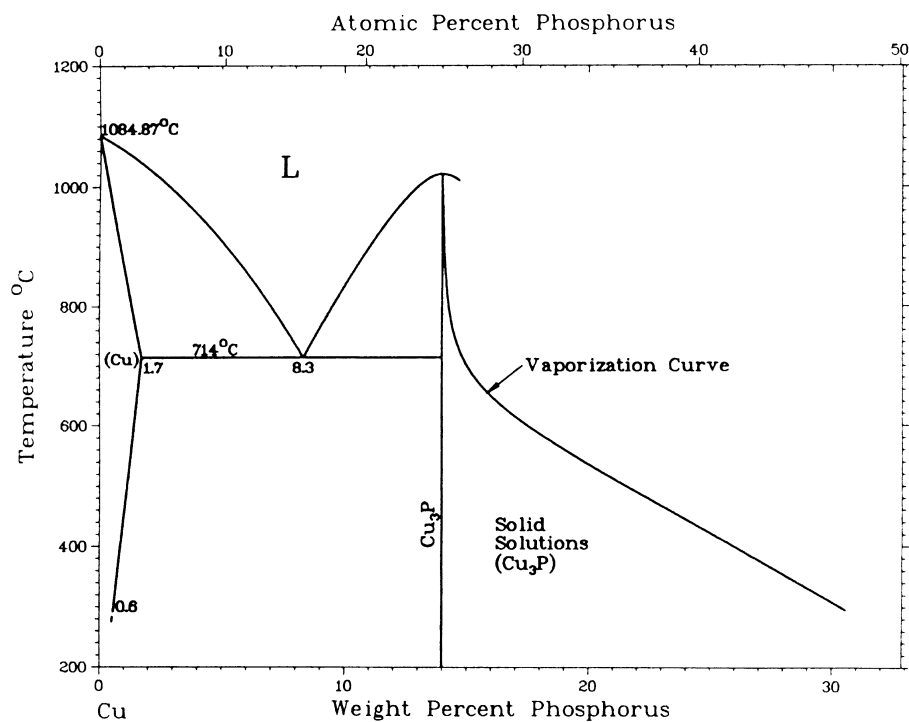


Figure A.2 : Diagramme de phase binaire entre le cuivre et le phosphore.

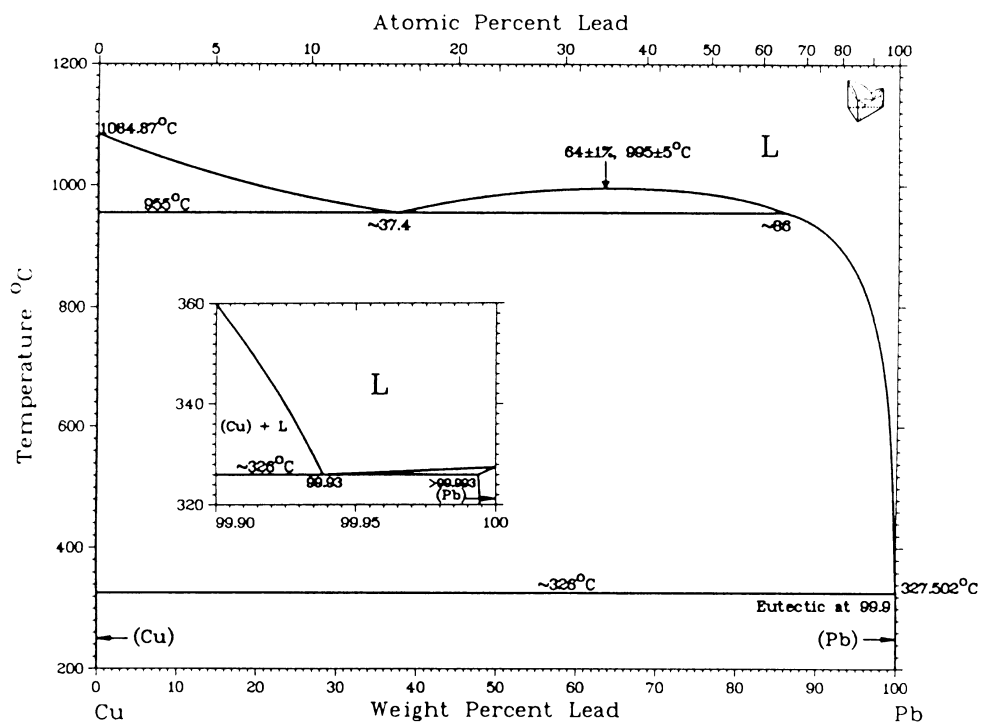


Figure A.3 : Diagramme de phase binaire entre le cuivre et le plomb.

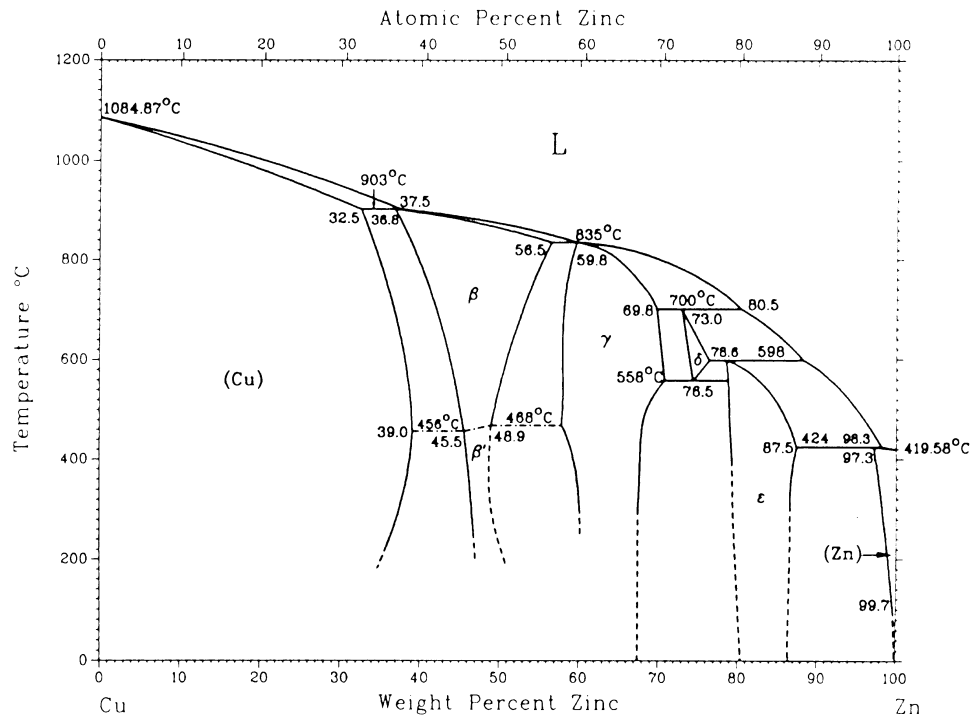


Figure A.4 : Diagramme de phase binaire entre le cuivre et le zinc.

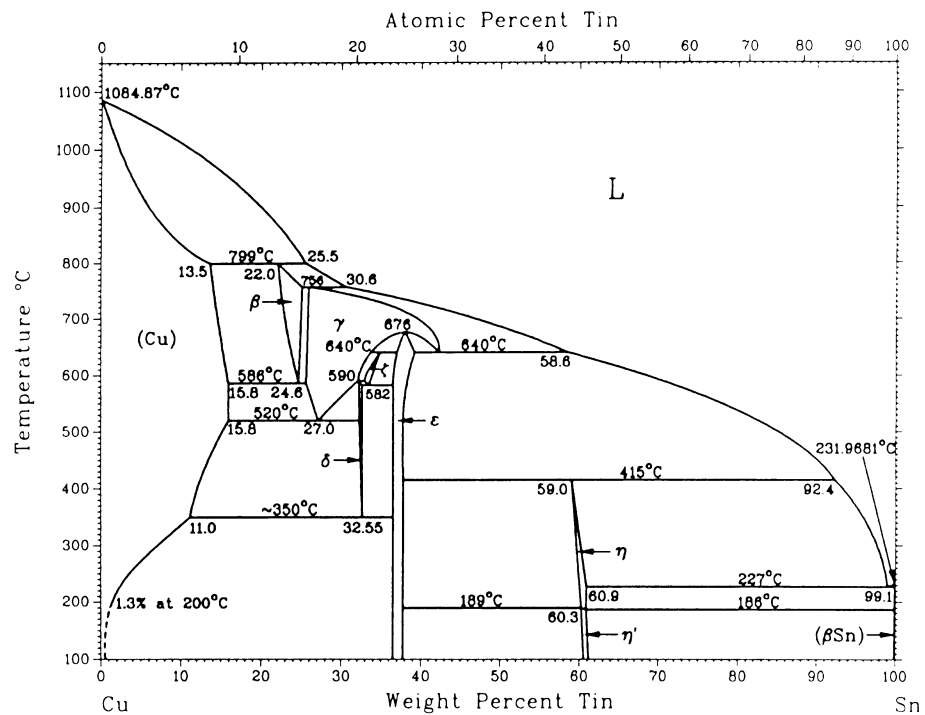


Figure A.5 : Diagramme de phase binaire entre le cuivre et l'étain.

ANNEXE B : PROPRIÉTÉS PHYSIQUES



Cette annexe regroupe les propriétés physiques qui ont été utilisées pour les calculs de simulation numérique, au cours de ce travail de recherche, pour les alliages C97 et BZ4. Les différentes valeurs ont été soit mesurées, soit estimées à l'aide des références [12, 116], aucune information n'ayant été trouvée sur ces alliages précisément, dans la littérature (voir chapitre 2).

Tableau B.1: Propriétés physiques des alliages C97 et BZ4, utilisés lors des simulations numériques.

Propriétés	C97	BZ4	Unités
C_p	$3.8 \cdot 10^6$	$3.8 \cdot 10^6$	$\text{J m}^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$
κ	245	80	$\text{W m}^{-1} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$
L_f	$1.6 \cdot 10^9$	$1.3 \cdot 10^9$	J m^{-3}
T_L	1081	1012	$^\circ\text{C}$
T_S	900	861	$^\circ\text{C}$
$f_s(T)$	mesures SPTA	mesures SPTA	-
μ	$4 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-4}$	$\text{kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$
ρ	$8.9 \cdot 10^3$	$8.8 \cdot 10^3$	kg m^{-3}
α	$7.24 \cdot 10^{-5}$	$2.39 \cdot 10^{-5}$	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
D_l	$1.3 \cdot 10^{-9}$	$1.3 \cdot 10^{-9}$	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
β_T	$18 \cdot 10^{-6}$	$17.7 \cdot 10^{-6}$	$^\circ\text{C}^{-1}$
σ_e (à $T = ?$)	$28 \cdot 10^6$ (à 20°C) $2 \cdot 10^6$ (à 1100°C)	$11 \cdot 10^6$ (à 20°C) $1.5 \cdot 10^6$ (à 1000°C)	$\Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$
μ_0	$4\pi \cdot 10^{-7}$	$4\pi \cdot 10^{-7}$	H m^{-1}
λ_2	$70 \cdot 10^{-6}$	$43 \cdot 10^{-6}$	m

RÉFÉRENCES



- [1] P.-D. Grasso, J.-M. Drezet and M. Rappaz, "Hot Tear Formation and Coalescence Observations in Organic Alloys", *Journal of Metals - electronic edition*, **Jan.**, (2002).
- [2] K. Nakano, "Continuous casting of copper and copper alloys", in *Shieffield 1987*, 1987), p. 413.
- [3] J. Campbell, *Castings*. Oxford, Butterworth Heinemann ed., 1991.
- [4] B. Hu and H. Li, "Grain Refinement of DIN226S Alloy at Lower Titanium and Boron Addition Levels", *Journal of Materials Processing Technology*, **74**, (1998), p. 56.
- [5] R. Trivedi and W. Kurz, "Dendritic Growth", *International Materials Reviews*, **39**, (1994), p. 49.
- [6] J. D. Hunt, "Steady-State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectics", *Mater. Sci. Eng.*, **65**, (1984), p. 75.
- [7] Ch. Vivès, "Electromagnetic refining of aluminium alloys by the CREM process: Part I. Working principle and metallurgical results", *Met. Trans.*, **20B**, (1989), p. 623.
- [8] C. J. Paradies, R. N. Smith and M. E. Glicksman, "The Influence of Convection during Solidification on Fragmentation of the Mushy Zone of a Model Alloy", *Metall. Mater. Trans.*, **28A**, (1997), p. 875.
- [9] A. Hellawell, S. Liu and S.Z. Lu, "Dendrite Fragmentation and the Effects of Fluid Flow in Casting", *JOM*, **March**, (1997), p. 18.
- [10] A. K. Dahle and L. Arnberg, "Development of Strenght in Solidifying Aluminium Alloys", *Acta Mater.*, **45**, (1997), p. 547.
- [11] K. Dies, *Kupfer und Kupferlegierungen in der Technik*. Springer Verlag, 1967.
- [12] Metals Handbook, *Properties and Selection : Non-Ferrous Alloys and Special-purpose Materials*, vol. 2, 9th ed, 1990.
- [13] R. W. Cahn, P. Haasen and E. J. Kramer, *Materials Science and Technology, volume 8: Structure and Properties of Non-Ferrous Alloys*. Weinhem, VCH, 1996.
- [14] L. Bäckerud, L.-M. Liljenvall and H. Steen, *Solidification Characteristics of some Copper Alloys*, International Copper Research Association, Inc., 1982.

- [15] R. H. Greaves, *Practical Microscopical Metallography*, Fourth ed, Chapman & Hall LTd., 1960.
- [16] E. G. West, *Copper and its Alloys*, John Wiley & Sons, 1982.
- [17] G. P. Ivantsov, *Doklady Akademii Nauk SSSR*, **58**, (1947), p. 567.
- [18] W. Kurz and D.J. Fisher, *Fundamentals of Solidification*, Fourth revised ed, Trans Tech Publication Ltd., 1998.
- [19] J. S. Langer and H. Müller-Krumbhaar, "Theory of Dendritic Growth I. II. and III." *Acta Met.*, **26**, (1978), p. 1681.
- [20] W. Kurz, B. Giovanola and R. Trivedi, "Theory of Microstructural Development during Rapid Solidification", *Acta Met.*, **34**, (1986), p. 823.
- [21] M. Rappaz and W. J. Boettinger, "On Dendritic Solidification of Multicomponent Alloys with Equal Liquid Diffusion Coefficients", *Acta Met.*, **47**, (1999), p. 3205.
- [22] W. Kurz and D. J. Fisher, "Dendrite Growth at the Limit of Stability : Tip Radius and Spacing", *Acta Met.*, **29**, (1981), p. 11.
- [23] T.Z. Kattamis and M. C. Flemings, "Dendrite Morphology Microsegregation and Homogenization of Low-Alloy Steel", *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **233**, (1965), p. 992.
- [24] U. Feurer and R. Wunderlin, *DGM Fachber.*, (1977), p. 38.
- [25] J. Lipton, W. Heinemann and W. Kurz, "Columnar to Equiaxed Transition (CET) in Castings - Part I: Determination of the CET from Cooling Curves", *Arch. Eisenhüttenwes.*, **55**, (1984), p. 195.
- [26] M. Rappaz, Ch. Charbon and R. Sasikumar, "About the Shape of Eutectic Grains Solidifying in a Thermal Gradient", *Acta Metall. Mater.*, **42**, (1994), p. 2365.
- [27] S. C. Flood and J. D. Hunt, "Columnar and Equiaxed Growth II. Equiaxed growth ahead of a columnar front", *J. Crystal Growth*, **82**, (1987), p. 552.
- [28] M. Gäumann, R. Trivedi and W. Kurz, "Nucleation Ahead of the Advancing Interface in Directional Solidification", *Mater. Sci. Eng.*, **A226-228**, (1997), p. 763.
- [29] C. Y. Wang and C. Berckermann, "A Multiphase Solute Diffusion Model for Dendritic Alloy Solidification", *Met. Trans.*, **24A**, (1993), p. 2787.
- [30] M. Gäumann, C. Bezençon, P. Canalis and W. Kurz, "Single-Crystal Laser Deposition of Superalloys : Processing-Microstructure Maps", *Acta Mater.*, **49**, (2001), p. 1051.
- [31] Ch.-A. Gandin and M. Rappaz, "A Coupled Finite Element-Cellular Automaton Model for the Prediction of Dendritic Grain Structures in Solidification Processes", *Acta Metall. Mater.*, **42**, (1994), p. 2233.
- [32] Ch.-A. Gandin, J.-L. Desbiolles, M. Rappaz and Ph. Thévoz, "A Three-Dimensional Cellular Automaton-Finite Element Model for the Prediction of Solidification Grain Structures", *Metall. Mater. Trans.*, **30A**, (1999), p. 3153.

- [33] G. H. Gulliver, *Metallic Alloys*. London, Griffin, 1922.
- [34] E. Scheil, "Bemerkungen zur Schichtkristallbildung", *Z. Metallforschung*, **34**, (1942), p. 70.
- [35] H. D. Brody and M. C. Flemings, "Solute Redistribution in Dendritic Solidification", *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **236**, (1966), p. 615.
- [36] T. W. Clyne and W. Kurz, "Solute Redistribution during Solidification with Rapid Solid State Diffusion", *Met. Trans.*, **12A**, (1981), p. 965.
- [37] S. Kobayashi, "Solute Redistribution during Solidification with Diffusion in Solid Phase : A Theoretical Analysis", *J. Crystal Growth*, **88**, (1988), p. 87.
- [38] R. Berton, *Magnéto-hydrodynamique*, Masson, 1991.
- [39] R. Moreau, "The Fundamental of MHD Related to Crystal Growth", *Progress in Crystal Growth and Characterization of materials*, (1999), p. 161.
- [40] P. A. Davidson, *An Introduction to Magnetohydrodynamics*. Cambridge, Cambridge University Press, 2001.
- [41] R. Moreau, *Magnetohydrodynamics*. Dordrecht, Kluwer Academic Publishers, 1990.
- [42] Y. R. Fautrelle, "Analytical and Numerical Aspects of the Electromagnetic Stirring Induced by Alternating Magnetic Fields", *J. Fluid Mech.*, **102**, (1981), p. 405.
- [43] J. J. Moore, *Continuous Casting*, vol. three. Warrendale, 1984.
- [44] J. L. Meyer, "Electromagnetic Processes in Aluminium Casthouses and Foundries : An Overview", in *Magnetohydrodynamics in Process Metallurgy*, J. Szekely, The Minerals, Metals & Materials Society, (1991), p. 127.
- [45] G. M. Meseha, "Electromagnetic Stirring Application in Copper Bar Manufacturing", *Wire Journal International*, (1997), p. 60.
- [46] Y. Fautrelle, *Fluid Flows Induced by Alternating Magnetic Fields*, in *Liquid Metal Magnetohydrodynamics*, J. Lielpeteris and R. Moreau, Eds.: Kluwer Academic Publishers, (1989), p. 223.
- [47] P. A. Davidson, "Magnetohydrodynamics in Materials Processing", *Annual Rev. Fluid Mech.*, **31**, (1999), p. 273.
- [48] P. Cremer and A. Alemany, "Aspects Expérimentaux du Brassage Electromagnétique en Creuset", *J. Méc. Appliquée*, **5**, (1981), p. 37.
- [49] E. Taberlet and Y. Fautrelle, "Turbulent Stirring in an Experimental Induction Furnace", *J. Fluid Mech.*, **159**, (1985), p. 409.
- [50] R. Krishnamurti, "On the Transition to Turbulent Convection. Part 2. The Transition to Time-Dependent Flow", *J. Fluid Mech.*, **42**, (1970), p. 309.
- [51] P. J. Prescott and F. P. Incropera, "The Effect of Turbulence on Solidification of a Binary Metal Alloy with Electromagnetic Stirring", *J. Heat Transfer*, **117**, (1995), p. 716.

- [52] E. D. Tarapore and J. W. Evans, "Fluid Velocities in Induction Melting Furnaces: Part I. Theory and Laboratory Experiments", *Met. Trans.*, **7B**, (1976), p. 343.
- [53] S. Cuevas, B. F. Picologlou, J. S. Walker, G. Talmage and T. Q. Hua, "Heat Transfer in Laminar and Turbulent Liquid-Metal MHD Flows in Square Ducts with Thin Conducting or Insulating Walls", *Int. J. Eng. Sci.*, **35**, (1997), p. 505.
- [54] P. Lehmann, R. Moreau, D. Camel and R. Bolcato, "Modification of Interdendritic Convection in Directional Solidification by a Uniform Magnetic Field", *Acta Mater.*, **46**, (1998), p. 4067.
- [55] S. N. Tewari, R. Shah and H. Song, "Effect of magnetic field on the microstructure and macrosegregation in directionally solidified Pb-Sn alloys", *Metall. Mater. Trans.*, **25A**, (1994), p. 1535.
- [56] S. Kobayashi, "Effects of an External Magnetic Field on Solute Distribution in Czochralsko Grown Crystals - A Theoretical Analysis", *J. Crystal Growth*, **75**, (1986), p. 301.
- [57] R. W. Series, "Czochralski Growth of Silicon under an Axial Magnetic Field", *J. Crystal Growth*, **97**, (1989), p. 85.
- [58] B. Cantor and A. Vogel, "Dendritic Solidification and Fluid Flow", *J. Crystal Growth*, **41**, (1977), p. 109.
- [59] S. R. Coriell, G.B. McFadden and R. F. Boisvert, "Effect of a Forced Couette Flow on Coupled Convective and Morphological Instabilities during Unidirectional Solidification", *J. Crystal Growth*, **69**, (1984), p. 15.
- [60] R. Ananth and W. N. Gill, "Dendritic Growth in Microgravity and Forced Convection", *J. Crystal Growth*, **179**, (1997), p. 263.
- [61] Ch. Charbon, A. Jacot and M. Rappaz, "3D Stochastic Modelling of Equiaxed Solidification in the Presence of Grain Movement", *Acta Metall. Mater.*, **42**, (1994), p. 3953.
- [62] A. Buchholz and S. Engler, "The Influence of Forced Convection on Solidification Interfaces", *Comp. Mat. Science*, **7**, (1996), p. 221.
- [63] M. R. Bridge and G. D. Rogers, "Structural Effects and Band Segregate Formation during the Electromagnetic Stirring of Strand-Cast Steel", *Met. Trans.*, **15B**, (1984), p. 581.
- [64] W. D. Griffiths and D. G. McCartney, "The Effect of Electromagnetic Stirring on Macrostructure and Macrosegregation in the Aluminium Alloy 7150", *Mater. Sci. Eng.*, **A222**, (1997), p. 140.
- [65] D. Brabazon, D. J. Browne and A. J. Carr, "Mechanical Stir Casting of Aluminium Alloys from the Mushy State : Process, Microstructure and Mechanical Properties", *Mater. Sci. Eng.*, **A326**, (2002), p. 370.
- [66] L. Beitelman, "Effect of Mold EMS Design on Billet Casting Productivity and Product Quality", *Can. Metall. Quarterly*, **38**, (2000), p. 301.
- [67] Ch. Vivès, "Electromagnetic refining of aluminium alloys by the CREM process: Part II. Specific practical problems and their solutions", *Met. Trans.*, **20B**, (1989), p. 631.

- [68] P. Desnain, F. Durand, Y. Fautrelle, D. Bloch, J. L. Meyer and J. P. Riquet, "Effects of the Electromagnetic Stirring on the Grain Size of Industrial Aluminium Alloys : Experiments and Theoretical Predictions", in *Light Metals 1988*, L. G. Boxall, The Metallurgical Society, Inc., (1988), p. 487.
- [69] D. A. Currey and C. A. Pickles, "Electromagnetic Stirring of Aluminium-Silicon Alloys", *J. Mater. Sci.*, **23**, (1988), p. 3756.
- [70] W. D. Griffiths and D. G. McCartney, "The Effect of Electromagnetic Stirring During Solidification on the Structure of Al-Si Alloys", *Mater. Sci. Eng.*, **A216**, (1996), p. 47.
- [71] M. C. Flemings, "Behavior of Metal Alloys in the Semisolid State", *Met. Trans.*, **22B**, (1991), p. 269.
- [72] M. Suéry, C. L. Martin and L. Salvo, "Overview of the Rheological Behaviour of Globular and Dendritic Slurries", in *4th International Conference on Semi-Solid Processing of Alloys and Composites*, The University of Sheffield, England, D. Kürwood et P. Kapranos, 1996), p. 21.
- [73] Ch. Vivès, "Elaboration of semisolid alloys by means of new electromagnetic rheocasting processes", *Met. Trans.*, **23B**, (1992), p. 189.
- [74] T. Sato, W. Kurz and K. Ikawa, "Experiments on Dendrite Branch Detachment in the Succinonitrile-Camphor Alloy", *Trans. of the Japan Institute of Metals*, **28**, (1987), p. 1012.
- [75] K. A. Jackson, J. D. Hunt, D. R. Uhlmann and T. P. Seward, "On the Origin of the Equiaxed Zone in Castings", *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **236**, (1966), p. 149.
- [76] S. Liu, S.-Z. Lu and A. Hellawell, "Dendritic Array Growth in the System $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ and $[\text{CH}_2\text{CN}]_2\text{-H}_2\text{O}$: The Detachment of Dendrite Side Arms Induced by Deceleration", *J. Crystal Growth*, **234**, (2002), p. 740.
- [77] J. P. Gu, C. Beckermann and A. F. Giamei, "Motion and Remelting of Dendrite Fragments during Directional Solidification of a Nickel-Base Superalloy", *Metall. Mater. Trans.*, **28A**, (1997), p. 1533.
- [78] A. Hellawell, J. R. Sarazin and R. S. Steube, "Channel Convection in Partly Solidified Systems", *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, **345**, (1993), p. 507.
- [79] J. Pilling and A. Hellawell, "Mechanical deformation of dendrites by fluid flow", *Metall. Mater. Trans.*, **27A**, (1996), p. 229.
- [80] S. Liu, S.-Z. Lu and A. Hellawell, "Mechanism of Dendrite Fragmentation in Castings", in *Light Metals 1997*, The Minerals, Metals & Materials Society, (1997), p. 933.
- [81] Q. Han and A. Hellawell, "Primary Particle Melting Rates and Equiaxed Grain Nucleation", *Metall. Mater. Trans.*, **28B**, (1997), p. 169.
- [82] J. Jang and A. Hellawell, "Use of $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ Analogue Castings to Model Aspects of Continuous Casting. Part 2 : Columnar-Equiaxed Grain Transition and Crystal Sedimentation Rates", *Ironmaking and Steelmaking*, **18**, (1991), p. 275.

- [83] Y. Kishida, K. Takeda, I. Miyoshino and E. Takeuchi, "Anisotropic Effect of Magneto-hydrodynamics on Metal Solidification", *ISIJ Int.*, **30**, (1990), p. 34.
- [84] D. B. Butrymowicz, *Diffusion Rate Data and Mass Transport Phenomena for Copper Systems, Part II*, INCRA, 1981.
- [85] P. C. Carman, "Fluid Flow Through Granular Beds", *Trans. Inst. Chem. Eng. Lond.*, **15**, (1937), p. 150.
- [86] A. E. Scheidegger, *The Physics of Flow Through Porous Media*, 3th ed. Toronto and Buffalo, Canada, University of Toronto Press, 1974.
- [87] M. Rappaz, M. Bellet and M. Deville, *Numerical Modeling in Materials Science and Engineering*, Springer -Verlag Berlin Heidelberg, 2003.
- [88] Ph. Thévoz, M. Rappaz and J.-L. Desbiolles, "3-MOS: A General FEM Code for the Prediction of Microstructures in Castings", in *Light Metals 1990*, (1990), p. 975.
- [89] R. Siegel and J. R. Howell, *Thermal Radiation Heat Transfer*, Hemisphere Publishing Corp., 1981.
- [90] C. Chaboudez, S. Clain, R. Glardon, D. Mari, J. Rappaz and W. Swierkosz, "Numerical Modeling in Induction Heating for Axisymmetric Geometries", *IEEE Transactions on Magnetics*, **33**, (1997), p. 739.
- [91] D. R. Poirier, "Permeability for Flow of Interdendritic Liquid in Columnar-Dendritic Alloys", *Met. Trans.*, **18B**, (1987), p. 245.
- [92] R. C. Mackenzie, *Differential Thermal Analysis*, vol. 2, Academic Press Inc. (London) ltd, 1972.
- [93] R. C. Mackenzie, *Differential Thermal Analysis*, vol. 1, Academic Press Inc. (London) ltd, 1970.
- [94] Y. T. Zhu and J. H. Devletian, "Determination of Equilibrium Solid-phase Transition Temperature using DTA", *Met. Trans.*, **22A**, (1991), p. 1993.
- [95] J. A. Martins and J. J. C. Cruz-Pinto, "The Temperature Calibration on Cooling of Differential Scanning Calorimeters", *Thermochimica Acta*, **332**, (1999), p. 179.
- [96] H. B. Dong and J. D. Hunt, "A Comparison of a Novel Single-Pan Calorimeter with a Conventional Heat-Flux Differential Scanning Calorimeter", *High Temperatures - High Pressures*, **32**, (2000), p. 311.
- [97] W. J. Boettinger and U. R. Kattner, "On Differential Thermal Analyzer Curves for the Melting and Freezing of Alloys", *Metall. Mater. Trans. A*, **33A**, (2002), p. 1779.
- [98] Th. Campanella, Ch. Charbon and M. Rappaz, "Determination of the Fraction of the Solid using Thermal Analysis for Technical Copper-based and Aluminium-based Alloys", *In preparation*, (2003).
- [99] R. I. Wu and J. H. Perepezko, "Liquidus Temperature Determination in Multicomponent Alloys by Thermal Analysis", *Metall. Mater. Trans.*, **31A**, (2000), p. 497.

- [100] C. A. Aliravci and ö. Pekgülyüz, "A Comparative Study of Fraction-Solid Evolution in Aluminium Alloys", in *Light Metals 1998*, Barry Welch, The Minerals, Metals & Materials Society, (1998), p. 1087.
- [101] J. Zou, *Simulation de la Solidification Equiaxe*, Thesis #774, Laboratoire de Métallurgie Physique, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Switzerland, 1989.
- [102] H. B. Dong and J. D. Hunt, "A Novel Single-Pan Scanning Calorimeter: Measurement of Thermophysical Properties of Metallic Alloys", *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, **64**, (2001), p. 341.
- [103] M. I. Pope and M. D. Judd, *Differential thermal analysis: A guide to the technique and its applications*, Heyden & son Ltd., 1980.
- [104] R. F. Speyer, *Thermal Analysis of Materials*, Marcel Dekker, inc., 1994.
- [105] P. Magnin, *Solidification Compétitive Stable/Metastable des Alliages Fe-C-X Eutectiques*, Thesis #560, Laboratoire de Métallurgie Physique, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Switzerland, 1985.
- [106] T. W. Clyne, "Heat Flow in Controlled Directional Solidification of Metals: Part I. Experimental Investigation", *J. Crystal Growth*, **50**, (1980), p. 684.
- [107] T. W. Clyne, "Heat Flow in Controlled Directional Solidification of Metals: Part II. Mathematical Model", *J. Crystal Growth*, **50**, (1980), p. 691.
- [108] J.-P. Eberhart, *Analyse Structurale et Chimique des Matériaux*, Dunod, 1989.
- [109] S. Henry, *Etude de la Germination et de la Croissance Maclées dans les Alliages d'Aluminium*, Thesis #1943, Laboratoire de Métallurgie Physique, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Switzerland, 1999.
- [110] J. H. Perepezko, B. A. Mueller and K. Ohsaka, in *Undercooled Alloy Phases*, E. W. Collings and C. C. Koch, Eds. Warrendale, PA: TMS-AIME, (1987), p. 289.
- [111] J. A. Warren and W. J. Boettinger, "Prediction of Dendritic Growth and Microsegregation Patterns in a Binary Alloy using Phase-field Method", *Acta Metall. Mater.*, **43**, (1995), p. 689.
- [112] M. Rappaz, Ch.-A. Gandin, J.-L. Desboilles and Ph. Thévoz, "Prediction of Grain Structures in Various Solidification Processes", *Metall. Mater. Trans.*, **27A**, (1996), p. 695.
- [113] Ch. Charbon, "Modélisation de la Coulée Continue": Rapport interne, Swissmetal Boillat, 1999.
- [114] Th. Campanella, "Influence of Permeability on the Grain Refinement Induced by Forced Convection in Copper-Base Alloys", *Scripta Materialia*, **Accepted**, (2003).
- [115] T. Jalanti, *Etude et Modélisation de la Macroségrégation dans la Coulée Semi-Continue des Alliages d'Aluminium*, Thesis #2145, Laboratoire de Métallurgie Physique, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Switzerland, 2000.
- [116] C. J. Smithells, *Metals Reference Book, 7th edition*. London, Butterwoths, 1992.

- [117] J. C. R. Hunt and M. R. Maxey, "Estimating Velocities and Shear Stresses in Turbulent Flows of Liquid Metals Driven by Low Frequency Electromagnetic Fields", in Jerusalem, Branover and Yakhot, Israel Univ. Press, (1980), p. 249.
- [118] J. Taine and J.-P. Petit, *Transferts Thermiques : Mécanique des Fluides Anisothermes*, 2nd ed. Paris, Dunod, 1995.
- [119] F. B. Pickering, *The Basis of Quantitative Metallography*, vol. Monograph No.1, the Institute of Metallurgical Technicians, 1976.
- [120] M. C. Flemings, *Solidification Processing*, 1974.
- [121] Q. Li and C. Beckermann, "Modeling of Free Dendritic Growth of Succinonitrile-Acetone Alloys with Thermosolutal Melt Convection", *J. Crystal Growth*, **236**, (2002), p. 432.
- [122] B. Appolaire, V. Albert, H. Combeau and G. Lesoult, "Free Growth of Equiaxed Crystals Settling in Undercooled $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ Melts", *Acta Mater.*, **46**, (1998), p. 5851.
- [123] ASM, *Binary Alloy Phase Diagram, Volume 1*. Metals Park, Ohio, American Society for Metals, 1986.

Thomas CAMPANELLA

Ch. De Veilloud, 52
CH-1024 ECUBLENS

Né le 03 février 1976 à Marseille
Marié - Nationalité française.



FORMATION-DIPLOMES

- 2003-1999 :** Préparation d'une **Thèse de Doctorat « ès Sciences »** au Laboratoire de Métallurgie Physique (LMPH) de l'Institut des Matériaux (IMX) de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL), sous la direction du Prof. M. Rappaz.
Sujet: Etude de l'effet du Brassage Electromagnétique sur les Microstructures d'Alliages Cuivreux.
- 1999-1998 :** **D.E.A Science des Matériaux** à l'Université de Provence de Marseille, centre St-Charles (France).
- 1998-1997 :** **Maîtrise de Chimie physique** à l'Université de Provence.
- 1997-1996 :** **Licence de Chimie physique** à l'Université de Provence.
- 1996-1994 :** **DEUG SSM** (filière Science et Structure de la Matière), option Sciences-Physiques à l'Université de Provence.
- 1994 :** Baccalauréat série C (mathématiques, physique et chimie).

EXPERIENCE PROFESSIONNELLE

- 2003-1999 :** **Doctorant** au Laboratoire de Métallurgie Physique (IMX-EPFL) :
Conception, réalisation et optimisation d'un four de solidification orientée, de type Bridgman, avec brassage électromagnétique ; techniques d'analyse thermique (DTA, DSC, SPTA) ; utilisation de logiciel de simulation numérique des procédés de solidification ; utilisation de méthodes de microscopie électronique à balayage : imagerie, micro-analyse et cartes d'orientation.
- Assistanat à l'enseignement :** Préparation et encadrement de travaux pratiques, de projets de semestre et de stage de fin d'année.
- 1999 :** **Travail de recherche de 4 mois sur l'électrodéposition sélective du cuivre** sur du silicium nano-rayé par Microscopie à Force Atomique, réalisé au Laboratoire de Céramiques (IMX – EPFL).
- 1998 :** **Elaboration de méthodes d'essais et plans d'assurance qualité sur 4 mois**, au Laboratoire du Service des Essences des Armées de Marseille. Mise en place d'analyse d'huiles moteur en service par spectrométrie IRTF et par voltamétrie cyclique en milieu organique.

- 1996 :** **Etude d'une soufflerie hypersonique (semestre d'été)**, application à la mécanique des fluides compressibles. Initiation à la recherche au sein de l'équipe des Milieux Hors Equilibre du département des Systèmes Energétiques et des Transferts Thermiques de l'Université de Provence de Marseille, centre St-Jérôme.
- 1995 :** **Etude physico-chimique de l'eau de consommation (semestre d'hiver)**, des villes de Marseille et Toulon, au laboratoire de l'Institut Universitaire Professionnalisé Génie de l'environnement de Marseille, centre St-Charles.

COMPETENCES INFORMATIQUES

- **Administration d'un parc informatique** d'une trentaine de stations de travail PC sous Windows 95/98, NT 4.0 et Windows 2000 Pro, en tant que responsable informatique du LMPH (PC incorporés à un réseau Windows 2000 commun à l'institut des matériaux de l'EPFL).
- **Logiciels maîtrisés** : Logiciels Adobe et Microsoft (Photoshop, FrameMaker, Microsoft Office, etc ...), SolidWorks (CAO).
- **Utilisation d'un logiciel de simulation numérique** appliquée à la solidification des alliages, Calcosoft2D et Calcosoft3D sous Unix, Linux et Windows.
- **Programmation FORTRAN 90.**

DIVERS

Sports : Voile et navigation nautique (permis Mer), football, tennis, squash et musculation.

Centres d'intérêts : Musique (musicien amateur), informatique, lecture et cinéma.

PUBLICATIONS SCIENTIFIQUES

- (1) Th. Campanella, Ch. Charbon, M. Rappaz, *Microstructure Development during Solidification of Copper-based Alloys*, in 7th European Conference on Advanced Materials and Processes, Euromat 2001 (CD-ROM Associazione Italiana di Metallurgia (AIM), The Federation of European Materials Societies (FEMS), 2001).
- (2) Th. Campanella, Ch. Charbon, M. Rappaz, *Influence of the permeability on the grain refinement induced by forced convection in copper-base alloys*, accepté à Scripta Materialia.
- (3) Th. Campanella, Ch. Charbon, M. Rappaz, *Dendritic solidification of multicomponent copper-base alloys*, en préparation.
- (4) Th. Campanella, Ch. Charbon, M. Rappaz, *Determination of the solid fraction of copper-base and aluminium-base industrial alloys by thermal analysis*, en préparation.

